

# 放射性廃棄物の地層処分システムにおける不均一な核種遅延効果についての評価手法

著者	新堀 雄一
URL	<a href="http://hdl.handle.net/10097/41346">http://hdl.handle.net/10097/41346</a>

放射性廃棄物の地層処分システムにおける  
不均一な核種遅延効果についての評価手法

(研究課題番号 11680509)

平成 11 年度～平成 12 年度科学研究費補助金  
基盤研究 (C) (2)  
研究成果報告書

平成 13 年 3 月

研究代表者 新堀 雄一  
(東北大学大学院工学研究科助教授)

東北大学図書



00021006750

附属図書館

## はしがき

本研究は、遅延効果が空間的に一様でない場合、その不均一性が相互に与える影響、系全体の評価に影響を与える重要な要素についての知見を得るために、科学研究費補助金により行われたものである。

## 研究組織

研究代表者：新堀 雄一（東北大学大学院工学研究科助教授）

## 研究経費

平成 11 年度	200 万円
平成 12 年度	150 万円
計	350 万円

## 研究発表

### 口頭発表

- (1) 遅延効果の空間分布に関する基礎的検討  
日本原子力学会 2000 年春の年会要旨集Ⅲ, 2000, p.933  
下田紗音子, 新堀雄一, 田中紘一, 朽山修
- (2) 遅延効果が一様でない系における核種移行  
土木学会第 55 回年次学術講演会講演講演概要集, 2000, CD-ROM, CS-202  
下田紗音子, 新堀雄一, 朽山修, 田中紘一
- (3) 遅延係数の不均質性と核種移行との関係  
日本原子力学会 2001 年春の年会要旨集, 2001, 印刷中  
下田紗音子, 新堀雄一, 田中紘一, 朽山修
- (4) ケイ酸共存下におけるシリカ鉱物へのユウロピウムの収着挙動  
日本原子力学会 2000 年春の年会要旨集Ⅲ, 2000, p.930  
春日靖宣, 新堀雄一, 朽山修, 田中紘一
- (5) シリカコロイドのモノマー化速度  
日本原子力学会 2000 年秋の大会予稿集Ⅲ, 2000, p.693

千田太詩，新堀雄一，朽山修，田中紘一

(6) HLW 地層処分システム安全評価における補完的指標について

日本原子力学会東北支部第 24 回研究交流会講演要旨集，2000，p.44-45

新堀雄一，朽山修，岩崎信，北村正晴

#### 投稿論文

放射性廃棄物地層処分システムにおける物質移行に及ぼす遅延効果の不均一性

資源と素材 環境工学特集号（地層処分），投稿中

新堀雄一，朽山修，千田侑



## 研究概要

高レベル放射性廃棄物の地層処分において、処分地層の遅延効果の評価は処分システムの安全評価において大変重要である。しかし地層は様々な岩石からなり、またその存在する化学的条件も場所によって異なる不均一な状態であるため、地層中での遅延効果は一樣でない。現在それぞれの要素についての研究は頻繁に行われており数々の知見が得られてきたが、地層処分システム全体としてみたときに、それらの要素が相互にどのような影響を与えるのか、どのように系の評価に反映するのかということは未だ十分な検討がなされていない。

本研究では核種と地層構成成分との相互作用を遅延効果として扱い、2次元物理モデルを用いた実験および、その実験結果と比較することにより妥当性を確認した数学モデルを用いて、遅延効果が空間的に一樣でない場合の系の応答を調べることで、系全体の評価に何が重要であるかを検討した。その結果次の知見を得た。

異なる遅延係数を、流れと垂直な方向へ層状に分布させた場合、その系の応答は層の数に依存するという実験結果を得た。作成した数学モデルはこの結果に良く一致する。層の数が少ない時は、それぞれの遅延効果を持つ媒体による独立したピークが確認されるが、層が増えるにつれそのピークが1つに近づき遅延係数の算術平均値を一樣に分布させた場合の応答に近似できるようになる。これは層が増えることにより層間での流れに垂直な方向への物質移動が頻繁になり、見かけ上混合拡散が進み垂直方向の濃度差が小さくなるためである。しかし、遅延効果の異なる層が流れ方向に分布する場合、その応答は層の数に関係なく、遅延係数の算術平均値を一樣に分布させた場合の応答と同じような応答が得られた。すなわち遅延係数が流れに垂直な分布を持つ場合、系の応答は算術平均値を用いた応答として評価することができる。また遅延係数が空間的にはランダムに分布し、その頻度はある確率密度関数に従っているような場合も、その応答は確率密度関数の種類に関係なく、系の応答は算術平均値を用いた応答と同じような応答が得られた。

以上のことから、異なる遅延効果が分布している際、系の応答に影響を及ぼすのは流れと垂直な方向の分布における媒体間での物質移動であり、それが層状になっている場合には、評価する系の大きさに対する層の数が応答に影響を及ぼすということが示唆された。

# 1 序論

## 1.1 緒言

原子力利用を進めていく上で、放射性廃棄物処分の問題は避けて通れない重要な課題である。原子力には発電の他にも医療や実験計測など多様な用途があるため廃棄物も各々の場所から発生するが[1]、その中でも最も大量の放射能を含む廃棄物が発生する場所として使用済み核燃料の再処理工場が挙げられる。わが国においては、現在、青森県六ヶ所村においてその施設が建設中であり、ここで原子力発電において使用した燃料からウラン、プルトニウムが回収され、MOX 燃料等に利用される予定である。この再処理工程において残った物質はすべて放射性廃棄物となる。資源の乏しいわが国においては化石燃料を利用した電力の安定供給には限度がある。また近年問題になっている地球温暖化の対策としてのCO<sub>2</sub>削減という面からも原子力発電は有用であって、現在ではわが国の総発電量においてその占める割合は約 40%に達しようとしている[2]。今後増えつづけるであろう電力の需要を原子力発電によりまかなうためにも、放射性廃棄物処分の問題を早急に解決する必要がある。

放射性廃棄物は含まれる放射能のレベルにより低レベル放射性廃棄物 (LLW) と高レベル放射性廃棄物 (HLW) に大別できる[1]。LLW は発電所や RI 利用施設などにおいて使われた作業着や洗浄液等の放射能の低い廃棄物であり、可能な限り減容したのちセメント等で固化され、ドラム缶に入れ低レベル放射

性廃棄物埋設センターに運ばれる。そこで、LLW は浅地層に埋設し放射能が減衰するまで厳重に管理される。一方、HLW はわが国の場合、主に使用済み核燃料を再処理した際に出る廃液であり放射化生成物、核分裂生成物、超ウラン核種等を含み強い放射能を持つ。これらの中には長い半減期を持ち $\alpha$ 壊変する<sup>237</sup>Np (半減期 214 万年) や<sup>243</sup>Am (半減期 7370 年) など含まれる[3]。したがって HLW は長い期間にわたって生態圏から隔離する必要がある。その方法として従来、宇宙への打ち出し、南極氷床への処分、海洋底への処分、深地層中への処分などが考えられてきたが、倫理的な問題、長期的な安定性を考えて深地層中への処分が最も適切であるとし研究が進められてきた。わが国では、2000 年 5 月に「特定放射性廃棄物の最終処分に関する法律」が成立し、地層処分により HLW を処分する方針を固めた。

HLW はその放射能が十分減衰するまで生態圏から隔離する必要がある。このため、ガラス固化体の形にした HLW はステンレス製のキャニスターに封入し、冷却のため 30~50 年間貯蔵庫にて一時貯蔵、その上でオーバーパック、緩衝材により囲み (人工バリア)、深地層中 (天然バリア) に処分する多重バリア構造をとる。このように構成された地層処分システムの安全性は、試験的にシステム全体を構築し実際に機能させて実証するという直接的な方法をとることができない。そのため地層処分の安全評価の方法は、放射能が十分減衰する前に HLW に遭遇するシナリオを考

え、システムの長期的な挙動を表現するための数学モデルの開発と必要なデータの整備をし、モデルとデータを用いた予測解析を行う。一方、この結果を規制によって定められた指針や基準と比較してシステムの安全性を判定する。考えられるシナリオとしては接近シナリオと地下水シナリオが挙げられる[3]。接近シナリオは地震、火山活動のような天然現象、あるいは資源掘削などの人間活動等により HLW と人間との物理的距離が接近することによって人間環境に影響を与えるというシナリオである。地下水シナリオは、地下水によって長期間のうちに人工バリアが劣化し放射性核種が地下水に溶出をはじめ生態圏に運ばれるというシナリオである。地層処分システムの将来挙動について通常想定されるシナリオは地下水シナリオである。そこで、本研究では幾つかのシナリオの中で地下水シナリオに着目する。

前述のように、HLW の中には人工バリアの健全性を保証し得る期間よりもさらに長い半減期を持つ放射性核種が含まれており、地下水により核種が我々に影響を及ぼす可能性については十分な検討を必要とする。天然バリアである地層には、地下水が流れる間に核種が岩石鉱物表面に収着や脱着を繰り返し実際の地下水の流れより核種の移行が遅れるという遅延効果が存在する。この遅延効果が大きければ、核種は生態圏まで移行する間に十分減衰する。したがってこの効果の評価は、地層処分システムの性能評価および安全評価において大変重要となる。

## 1.2 地層中の核種移行

地層中における核種の移行に影響を及ぼす要素として、地下水の組成や化学的性質、岩石鉱物表面や析出物への核種の収着、亀裂の連結性、微生物等様々なものが考えられる[3]。その中でも天然バリアの遅延効果を論じる上で基礎となるのは地下水と岩石との間の核種の分配である。核種の岩石への分配が大きくなればその分核種の移動速度は地下水の流れに比較して遅くなり、より大きな遅延効果が得られる。この分配を左右するのは、地下水中に溶出した核種の岩石への収着、溶解、沈殿、結晶化、有機物との錯体形成[4]、地下水中に多量に含まれる元素との共沈、加水分解など様々な化学反応である[5]。それらの現象は岩石の成分、地下水に含まれるイオンや有機物の影響などの条件に依存する。地層は様々な鉱物により構成されており、また地下水の性質も場所により異なっている。天然バリアの性能評価を行うために、核種と多様な条件下での種々の地層構成成分との相互作用を研究することは重要である（たとえば、[6-8]）。具体的な処分地を決定していない現時点では、核種の移行に関連する地層中の各成分の役割を明らかにし、支配的な影響を及ぼす因子を見極めることにより複雑な地層をモデル化し、地層処分システムの安全な設計概要を社会に提示しなければならない。このため、個々のデータの採取、その精度向上に加え、処分場システム全体の視点から個々のデータの有効な利用、不足しているデータなどを整理する必要がある。

### 1.3 遅延係数

前述のように、核種の遅延は地下水と岩石との分配に大きく左右される。岩石への分配が多ければ、すなわち岩石への核種の収着が強ければ遅延効果は大きくなる。その収着の強さの程度を表わす係数として分配係数が一般に用いられる[9][10]。分配係数は固相中と液相中の核種濃度の比、すなわち式(1.1)で定義する。

分配係数  $K_d$  (m<sup>3</sup>/kg)

$$K_d = \frac{\text{収着した着目核種の質量(kg)}}{\text{固相の質量(kg)}} \quad (1.1)$$

$$= \frac{\text{液相中の着目核種の質量(kg)}}{\text{液相の体積(m}^3\text{)}}$$

この分配係数は、岩石への核種の収着が瞬時に起こり短時間で平衡に達し、可逆的なものであると仮定したみかけの平衡定数である。 $K_d$  が大きいほど収着力は強くなる。この分配係数  $K_d$  を用いて遅延係数  $R_d$  を定義する。この係数については次のように説明を加える。

まず1次元での核種の移行を例にとりて考える。核種は地下水の移流と混合拡散によって移行し、その間に固相との収着や脱着が起こる。よって物質収支式は次式のようになる。

$$\varepsilon \frac{\partial c}{\partial t} + (1-\varepsilon) \frac{\partial s}{\partial t} = D_e \frac{\partial^2 c}{\partial x^2} - u \frac{\partial c}{\partial x} - \lambda c + \lambda_p c_p \quad (1.2)$$

ここで  $\varepsilon$  は空隙率、 $c$  は着目核種の濃度 (kg/m<sup>3</sup>)、 $t$  は時間(s)、 $s$  は固相単位体積あたりの着目核種の質量(kg/m<sup>3</sup>)、 $D_e$  は混合拡散係数(m<sup>2</sup>/s)、 $x$  は距離(m)、 $u$  は流速(m/s)、 $\lambda$  は着目核種の崩壊定数(s<sup>-1</sup>)、 $\lambda_p$  は親核種の崩壊定数(s<sup>-1</sup>)、そして  $c_p$  は親核種の濃度(kg/m<sup>3</sup>)で

ある。式(1.2)の左辺が蓄積項、右辺第1項が拡散項、第2項が移流項、第3項、第4項が壊変項である。いま、核種の液相と固相の間の平衡が成り立つとすると、 $s$  は

$$s = \rho_s K_d c \quad (1.3)$$

と表せる。 $\rho_s$  は固相の密度(kg/m<sup>3</sup>)である。これを式(1.2)に代入すると、

$$\{\varepsilon + (1-\varepsilon)\rho_s K_d\} \frac{\partial c}{\partial t} = D_e \frac{\partial^2 c}{\partial x^2} - u \frac{\partial c}{\partial x} - \lambda c + \lambda_p c_p \quad (1.4)$$

となり、ここで遅延係数  $R_d$  は次のように定義される。

$$R_d = 1 + \frac{(1-\varepsilon)\rho_s}{\varepsilon} K_d \quad (1.5)$$

したがって物質収支式は、 $R_d$  を用いて

$$\varepsilon R_d \frac{\partial c}{\partial t} = D_e \frac{\partial^2 c}{\partial x^2} - u \frac{\partial c}{\partial x} - \lambda c + \lambda_p c_p \quad (1.6)$$

と表される。この物質収支式は2次元、3次元への拡張が可能である。 $R_d$  が大きいほど遅延効果は大きくなり核種の移行は遅くなる。

### 1.4 本研究の目的

前述したように地層は様々な岩石からなり、またその存在する化学的条件も場所によって異なる不均一な状態である。したがってそれぞれの核種における地下水中と岩石との分配も異なり、地層中での遅延効果は一樣でない。現在それぞれの要素についての研究は頻繁に行われており数々の知見が得られてきた。しかし地層処分システム全体としてみたときに、それらの要素が相互にどのような影響を与えるのか、どのように系の評価に反映するのか

ということは未だ十分な検討がなされていない。

本研究では核種と地層構成成分との相互作用を遅延効果として扱い、その遅延効果が空間的に一様でない場合の系の遅延効果を調べることに、系全体の評価に何が重要であるかを整理する。例えば系の中に遅延効果の大きい空間と小さい空間があった場合、系全体の評価としては小さい遅延効果の影響を考えなければいけないのか、単純に遅延効果の平均を考えればいいのかというように、系の遅延効果を考える上で重要な情報について、収着力の異なる媒体を用いて作成した物理モデルによる実験および遅延効果の分布を考慮した2次元数学モデルにより検討を行った。

以下に本論文の構成および各章において検討する項目をまとめる。なお2章、3章および4章において検討する項目は箇条書きとし、通し番号を付した。

第1章「序論」においては本研究の背景、位置付けおよび研究目的を述べた。

第2章「物理モデルによる実験」においては

- 1) 系全体の応答に及ぼす流れに垂直な方向に分布する遅延効果の影響
- 2) 一般に成り立つとしているKdモデルの、本実験結果への適用性

第3章「2次元数学モデルの作成とその妥当性」においては

- 3) 数学モデルの作成とその実験結果との比較による妥当性の確認
- 4) 遅延効果が一様でない系における混合拡散係数の異方性

第4章「数学モデルによる遅延係数の空間分布の検討」においては

- 5) 系全体の応答に最も影響を及ぼす要素の整理
- 6) 遅延係数の空間分布を特定できない場合における系全体の遅延効果の評価

第5章「結論」では本論文を総括し、上記の検討項目に対応し得られた知見を示した。

## 2 物理モデルによる実験

### 2.1 緒言

本章では、遅延効果が空間的に一様でない場合と系全体の遅延効果の評価との関係について基礎的な知見を得るために、遅延効果の異なるガラスビーズとシリカゲルの層で物理モデルを作成し、 $\text{Eu}^{3+}$ 溶液を一定時間注入し出口で採取した溶液の濃度を光度定量法により測定し系からの応答を得る。ここでは、ひとつの試みとして各層の数を変化させて実験を行い、その層の数と系全体の遅延効果との関係を整理した。

なお、本実験では安定な $\text{Eu}^{3+}$ を用いた。これは、実験が、連続的に系に流体を流す、いわゆる連続系の実験のため注入溶液の取り扱いが容易であることのみならず、HLWにおける長半減期核種の一つである $\text{Am}^{3+}$ と化学的相似性を有することによる。

### 2.1 実験

#### 2.2.1 使用機器および試薬・試料

以下に実験に使用した測定機器、試薬および試料を記す。



- 吸光度測定：株式会社日立製作所製 557 形二波長分光光度計
- pH 測定：東亜電波工業株式会社製 WM-50EG 型電気伝導率・pH メータおよび同社製 複合ガラス電極 GST-5721C
- ポンプ：東京理化学器械株式会社製 MP-3N 型マイクロチューブポンプおよび同社製 純正シリコンチューブ 1.15 φ × 3.2 mm
- 圧力計：株式会社共和電業製 PGM-02KG 型圧力変換器および同社製 WGI-300B 計装用増幅器
- 傾斜系：株式会社井内盛栄堂製 円盤型傾斜計
- ふるい：飯田製作所製 ステンレスふるい 125 μm および 100 μm
- ガラスビーズ：株式会社東新理興製 東新ガラスビーズ（粒径 0.105～0.125 mm）
- シリカゲル：和光純薬工業株式会社製 ワコーゲル C-200（粒径 0.075～0.15 mm）ふるいわけ 0.1～0.125 mm のものを使用
- 超純水：純水を日本ミリポア株式会社製 Millipore（Milli-Q SP）に透過させ精製
- $\text{Eu}^{3+}$  溶液：三津和化学薬品株式会社製  $\text{Eu}(\text{NO}_3)_3 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$ （分子量 446.07） $10^{-3}\text{M}$   $\text{HNO}_3$  溶液とし使用
- Ethylenediaminetetraacetic acid 2Na salt dihydrate（EDTA）：株式会社同仁化学研究所製，  
 $\text{C}_{10}\text{H}_{14}\text{N}_2\text{O}_8\text{Na}_2 \cdot 2\text{H}_2\text{O}=372.24$
- Xylenol Orange（XO）：株式会社同仁化学研究所製，  
 $\text{C}_{31}\text{H}_{30}\text{N}_2\text{O}_{13}\text{SNa}_2=716.63$
- Arsenazo-III（Ar-III）：株式会社同仁化学研究所製  
2,7-Bis(2-arsenophenylazo)-1,8-dihydroxy-3,6-naphthalenedisulfonic acid，  
 $\text{C}_{22}\text{H}_{18}\text{As}_2\text{N}_4\text{O}_{14}\text{S}_2=776.37$
- pH 緩衝液：株式会社同仁化学研究所  
MES（2-(N-Morpholino)ethanesulfonic acid monohydrate，  
 $\text{C}_6\text{H}_{13}\text{NO}_4\text{S} \cdot \text{H}_2\text{O}=213.25$ ）および和光純薬工業株式会社製 THAM（Tris(hydroxymethyl)aminomethane，  
 $\text{H}_2\text{NC}(\text{CH}_2\text{OH})_3=121.14$ ）を適宜混ぜて使用  
なお、 $\text{Eu}^{3+}$  溶液は試薬の保存条件等により試薬に含まれている水和水が化学量論的に水和水数が 6 であるか不明であるので、EDTA および指示薬として XO を用いてキレート滴定 [11] を行い、 $\text{Eu}^{3+}$  保存溶液中の  $\text{Eu}^{3+}$  の濃度を求めた。

## 2.2.2 $\text{Eu}^{3+}$ の Ar-III による吸光光度定量法の検討

$\text{Eu}^{3+}$  溶液を、作成する物理モデルに流しその応答を得るためには  $\text{Eu}^{3+}$  を定量する必要がある。ここでは平板セルの出口で採取した溶液中の濃度を、Ar-III を発色試薬として用いる吸光光度法 [12, 13] により定量した。

まず、吸光度から  $\text{Eu}^{3+}$  の濃度を知るために検量線を得る必要がある。そこで、本研究では、Ar-III の発色において最適条件を得るためにいくつかの検討を行い、得られた条件で最終的に検量線を引いた。実験手順は以下の通

りである。

25 ml メスフラスコに  $\text{Eu}^{3+}$  溶液、Ar-III 溶液を適量入れ、超純水と pH 緩衝剤 ( $\text{HNO}_3$  または 0.1 M MES と 0.1 M THAM の混合溶液) で調整し、求める濃度、pH になるようにした。調整した溶液は光路長 1 cm の石英セルに入れ、また標準セルには超純水を入れ水対照にて吸光度を測定する。

#### (1) 測定波長

図 2.1 に  $1.6 \times 10^{-5}$  M の Ar-III に  $0.1 \sim 1.0 \times 10^{-5}$  M の  $\text{Eu}^{3+}$  を共存させた pH 3.0 の溶液の水対照での吸収スペクトルを示す。測定波長は感度が高く、変化が緩やかで波長目盛りをあわせる際の多少の誤差が吸光度に影響しにくいところを選ぶ。図より 650 nm での吸収ピークにおける吸光度を選んだ。

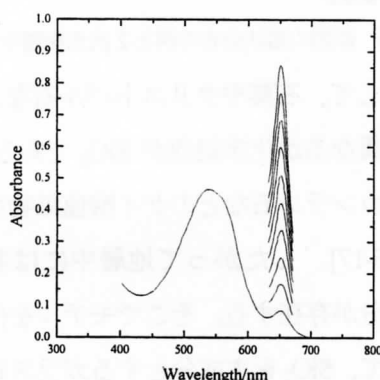


図 2.1 pH 3.0 における Ar-III および  $\text{Eu}^{3+}$  共存溶液の吸収スペクトル

#### (2) 測定 pH

図 2.2 に  $2.4 \times 10^{-5}$  M の Ar-III と  $8.3 \times 10^{-6}$  M の  $\text{Eu}^{3+}$  を共存させた溶液の 650 nm における吸光度の pH 変化を示す。pH 2.5~3.0 付近でほぼ一定でその値は最も大きい。よって測定する際の溶液の pH は 3.0 付近になるように調

整する。

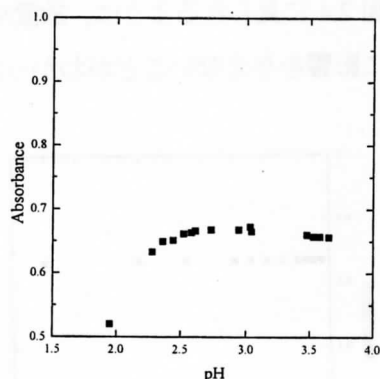


図 2.2 Ar-III と  $\text{Eu}^{3+}$  共存溶液の 650 nm における吸光度の pH 変化

#### (3) Ar-III と $\text{Eu}^{3+}$ の濃度比

$\text{Eu}^{3+}$  濃度を  $8.3 \times 10^{-6}$  M に固定し Ar-III の濃度を変化させ吸光度を測定する。なお溶液の pH は 3.0、測定波長は 650 nm である。図 2.3 に示すように、濃度比が約 1.5 のあたりで吸光度が最大になることがわかる。そこで、やや Ar-III 過剰の状態にて測定を行う。

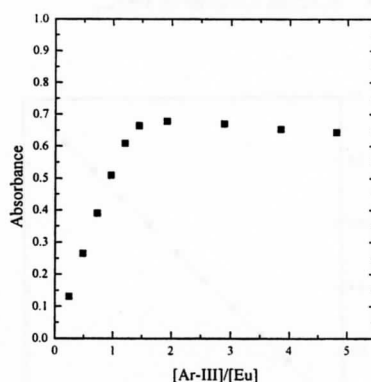


図 2.3 固定  $\text{Eu}^{3+}$  濃度における Ar-III 濃度変化に対する吸光度の変化

#### (4) 放置時間

$2.4 \times 10^{-5}$  M の Ar-III と  $8.3 \times 10^{-6}$  M の  $\text{Eu}^{3+}$



を共存させた溶液を、溶液を調整してから測定するまでの時間を変化させ吸光度を測定する。図 2.4 に見られるように、放置時間は吸光度に影響を与えないことがわかった。

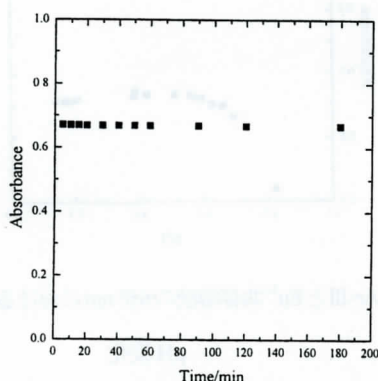


図 2.4 溶液調整後の放置時間に対する吸光度変化

### (5) 検量線

図 2.5 に検量線を示す。Ar-III の濃度を  $1.6 \times 10^{-5} \text{ M}$  とし  $\text{Eu}^{3+}$  濃度を  $0.1 \sim 1 \times 10^{-5} \text{ M}$  の間で変化させて吸光度を測定した。なお測定波長は 650 nm、pH 3.0 で測定した。分子吸光係数は  $8.25 \times 10^4 \text{ M}^{-1} \text{ cm}^{-1}$  である。この検量線を用い  $\text{Eu}^{3+}$  を定量し応答を得た。

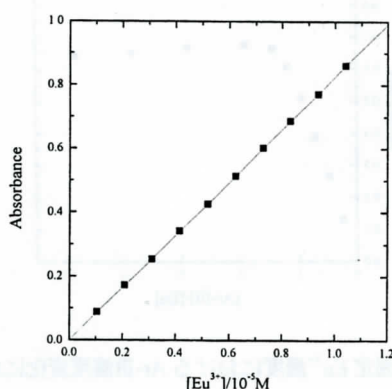


図 2.5 定量に用いる  $\text{Eu}^{3+}$  の検量線

## 2.2.3 2次元物理モデル

地層は様々な鉱物よりなる結晶質岩や堆積岩などにより構成されており[3]、また亀裂中には生成した充填鉱物の存在[14]など、異なる鉱物組成や特性を持つ。例えば図 2.6 の概要図のように、地層中の亀裂平面に充填鉱物があり、その両側の母岩が熱水変質作用により性質が変化しているような場合、層状に異なる状態が現れる。このような不均一な地層のモデルを簡単に、収着力の異なる 2 種類の媒体を用いた層で作る。地層を構成する主な

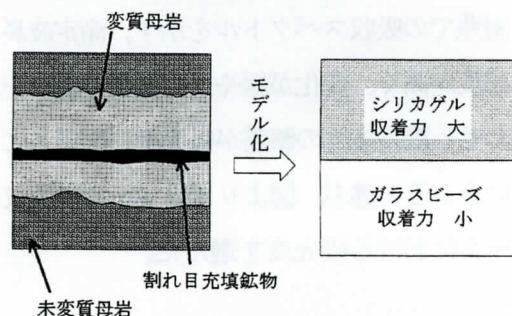


図 2.6 鉱物の層状分布の例と 2 次元物理モデル

鉱物として、石英やクリストバル石など結晶構造は異なるが化学組成が  $\text{SiO}_2$  であるもの、長石やカンラン石などのケイ酸塩鉱物などがある[15-17]。したがって地層中には多くの  $\text{SiO}_2$  成分が存在する。そこでモデルを作る媒体として、 $\text{SiO}_2$  を主成分とするガラスビーズとシリカゲルの 2 種類を選んだ。収着力の小さいものとしてガラスビーズ、大きいものとしてシリカゲルを用いた。

ガラスビーズとシリカゲルは粒径を  $0.1 \sim 0.125 \text{ mm}$  に揃え、超純水（以下、水）で数回洗浄した。この際、ガラスビーズを洗浄した液の pH が高かったので (pH9 以上)  $0.1 \text{ M HNO}_3$  で洗浄しそのあと水で洗浄した。平板

セルに水を入れながらガラスビーズおよびシリカゲルを充填し、空隙を水が飽和する状態にした。

粒子を充填する平板セルは厚さ 10 mm のアクリル板を用いて作成した。図 2.7 に示すように底板、中を六角形にくりぬいた中板、天

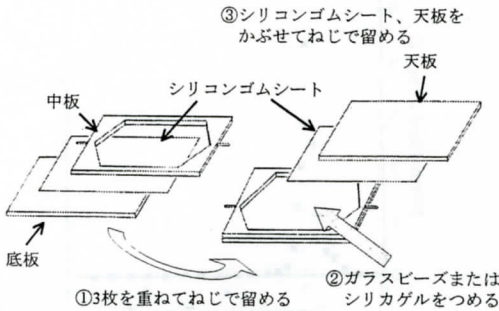


図 2.7 平板セル

板の三枚を重ねてねじにより留める。底板と中板の間、中板と天板の間に厚さ 0.5 mm のシリコンゴムシートをはさみ、六角形にくりぬいた中板の側面にもシートを貼り付けた。これは充填粒子とアクリル板の間の空隙が大きくなり、溶液が流れやすくなるのを防ぐためである。

物理モデルは図 2.8 の正方形の部分 (100 mm×100 mm×10 mm) に作る。入口と出口の三角形の部分には常にガラスビーズを詰める。これは整流域の役割を持つ。

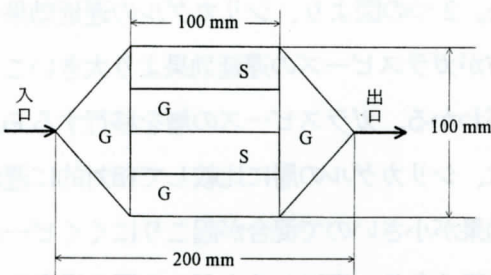


図 2.8 2次元物理モデルの作成

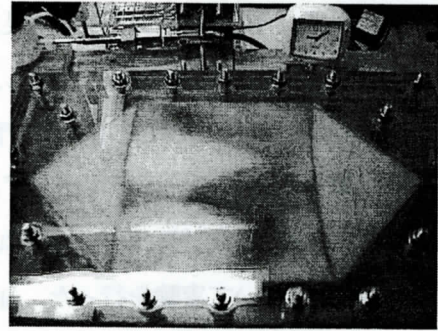


図 2.9 平板セルの写真

## 2.2.4 応答実験

図 2.10 に実験装置を示す。平板セルは水平に置き、ポンプを用いて流量を一定にした溶液を流す。このとき脈動が生じるので途中にトラップをつけた[18]。これはアクリルパイプに溶液と若干の空気を入れたもので、空気が脈動を吸収する。出口で溶液を 20 ml のスクリー管瓶に一定量取り、溶液調整し光度定量法により濃度を求め応答を得る。

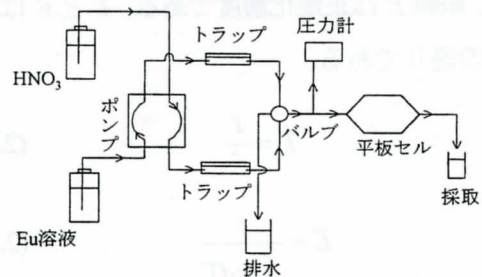


図 2.10 実験装置

まず、pH 3 弱に調整した  $\text{HNO}_3$  溶液を流し平板セル内の pH を一定にする。HLW が処分されるような深さの地層において地下水はアルカリ性を示すことが多い[14]。しかし高い pH においてガラスビーズとシリカゲルでその応答が確認できなかった。これは  $\text{Eu}^{3+}$  が加水分解をおこし沈殿等により収着が強くなっ

たためである。本研究では、遅延効果が空間的に一様でない状態を実験的に模擬し、それを系全体の遅延効果として応答の形で評価することに着目したので、ガラスビーズとシリカゲルでそれぞれの応答に明らかに違いが見られる pH 3 において実験を行った。pH が一定であることが確認できたらバルブを切り替え  $\text{Eu}^{3+}$  溶液を流す。所定時間流した後再びバルブを切り替え、 $\text{HNO}_3$  溶液を流す。 $\text{Eu}^{3+}$  溶液が平板セルに入った時間を 0 とし、出口で採取する溶液濃度の時間変化をプロットする。

## 2.3 実験結果および考察

### 2.3.1 系の遅延効果に与える層の影響

図 2.11 にガラスビーズ 1 層、図 2.12 にシリカゲル 1 層のそれぞれの応答を示す。流量は 1.3 ml/min、 $\text{Eu}^{3+}$  溶液濃度は  $0.8 \times 10^{-3}$  M、注入時間は 100 s である。図の横軸  $T$  は無次元時間、縦軸  $E$  は正規化濃度である。 $T$  と  $E$  は以下の通りである。

$$T = \frac{t}{t^*} \quad (2.1)$$

$$E = \frac{c}{\int_0^\infty c dT} \quad (2.2)$$

ここで  $t$  は時間 (s)、 $t^*$  は空間時間 (s)、 $c$  は濃度 (M) である。空間時間  $t^*$  は空隙体積を流量で割った値である。すなわち

$$t^* = \frac{\varepsilon V}{Q} \quad (2.3)$$

である。ここで  $\varepsilon$  は空隙率、 $V$  は体積 ( $\text{cm}^3$ )、 $Q$  は流量 ( $\text{cm}^3/\text{s}$ ) である。無次元時間  $T$  により  $E$  を積分すると 1 になる。本実験において

空隙率は 0.4 である。ガラスビーズ、シリカゲルともに矩形の入力に対して 1 つのピークが確認される。これは物質の移行が、移流に加え混合拡散によっても起こっているためであ

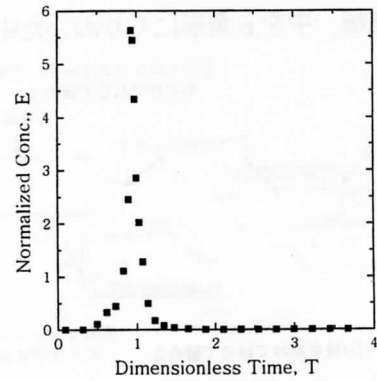


図 2.11 ガラスビーズ 1 層での応答

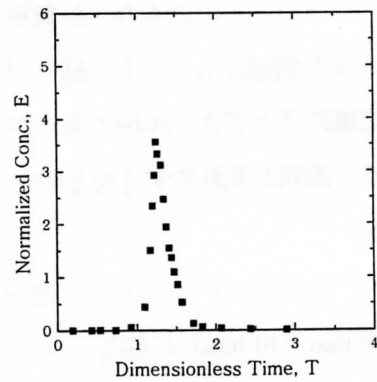


図 2.12 シリカゲル 1 層での応答

る。2 つの図より、シリカゲルの遅延効果の方がガラスビーズの遅延効果より大きいことがわかる。ガラスビーズの層を移行する  $\text{Eu}^{3+}$  は、シリカゲルの層に比較して相対的に遅延効果が小さいので混合が起こりにくくピークが鋭くなり、逆にシリカゲルの層の場合  $\text{Eu}^{3+}$  は相対的に遅延効果が大きいので混合によりピークは低くなる。なお、ガラスビーズとシ

リカゲルの浸透率は1次元カラム実験よりそれぞれ  $5.1 \times 10^{-12} \text{ m}^2$  と  $4.2 \times 10^{-12} \text{ m}^2$  であり、ほとんど差がないことを確認した。これら遅延効果の異なる2つの媒体を図2.13に示すような2層、4層、8層に詰めて実験を行う。そ

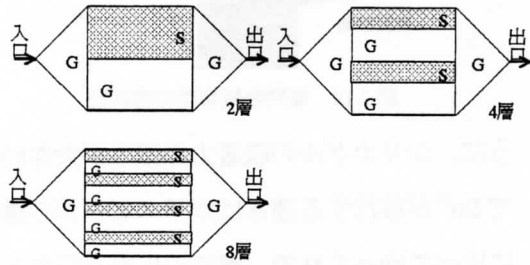


図 2.13 2次元物理モデル各層の概略図

(G: ガラスビーズ S: シリカゲル)

の応答を図2.14～2.16に示す。溶液はガラスビーズとシリカゲル、それぞれの領域を移行するので、それぞれ単層の時の特性を備えたピークがいずれも観測されるはずである。実際、図2.14と図2.15より、2層の場合と4層の場合では応答にほとんど違いは見られず、どちらの場合も2つのピークが確認される。

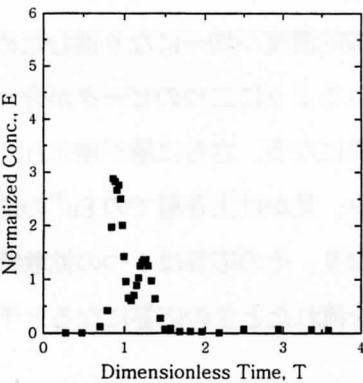


図 2.14 ガラスビーズ・シリカゲル2層での応答  
はじめのピークがガラスビーズによるもので、2つ目のピークがシリカゲルによるものである。ところが8層になるとこの2つのピーク

は近づき、それぞれの層の独立性は弱くなるという結果が図2.16より得られた。

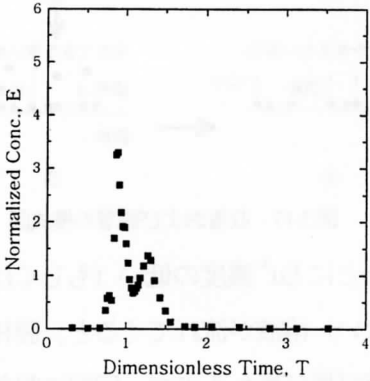


図 2.15 ガラスビーズ・シリカゲル4層での応答

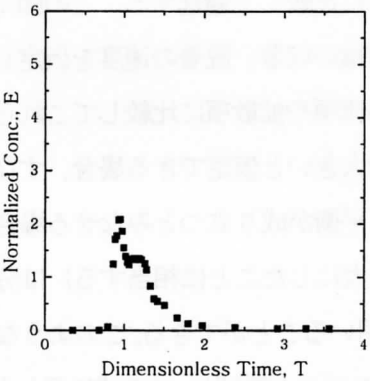


図 2.16 ガラスビーズ・シリカゲル8層での応答

媒体中を溶液が流れる際に  $\text{Eu}^{3+}$  が媒体へ収着や脱着を繰り返すことにより、その応答は流れよりも遅れる。模式図を図2.17に示す。媒体中に移流および混合拡散により流れ込んだ  $\text{Eu}^{3+}$  はその分配比に従って固相と液相に分かれる。  $\text{Eu}^{3+}$  が固相に収着して濃度の低くなった溶液は流れて先へ進み、あとに濃度のより高い溶液が流れてくると、固相と液相の平衡が崩れ、  $\text{Eu}^{3+}$  は再び分配され固相へ収着する。  $\text{Eu}^{3+}$  溶液を流すのは一定時間であるので、



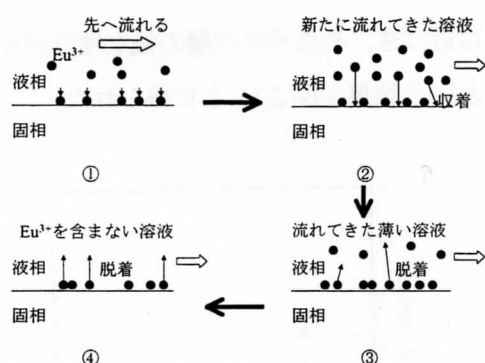


図 2.17 収着および脱着の模式図

そのあとに  $\text{Eu}^{3+}$  濃度の低い（もしくは  $\text{Eu}^{3+}$  を含まない）溶液が流れてくると、固相と液相の平衡が再び崩れるので、固相に収着していた  $\text{Eu}^{3+}$  が液相中へ溶解する。移行経路においてこのような現象が繰り返され核種は地下水の流れに比較して遅延する。この図では説明上、核種の収着、脱着の速度を仮定しているが、移流項や拡散項に比較してこれらの速度が十分大きいと仮定できる場合、すなわち、瞬時に平衡が成り立つとみなせる場合（速度を無限大にしたことに相当する）は分配係数  $K_d$  を用いることができる。このようなモデルは  $K_d$  モデルと呼ばれ、(1.5)式に示した  $K_d$  を含んだ遅延係数により遅延効果を表わす。

遅延効果の異なる層が隣り合っている場合、収着力がそれぞれ異なるため分配比も違う。したがって、固相と液相に  $\text{Eu}^{3+}$  が分配されるが、その媒体境界の液相で濃度差ができる。模式図を図 2.18 に示す。その濃度勾配により

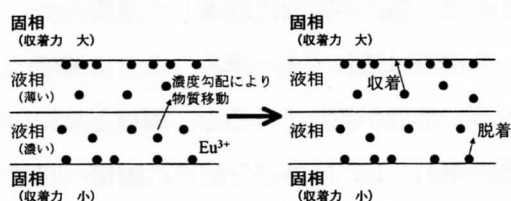


図 2.18 層境界での物質移動の模式図

物質移動が生じ、また溶液が流れることにより、ガラスビーズと液相、シリカゲルと液相との平衡が崩れる。図 2.19 に示す概要図のよ



図 2.19 層間物質移動の模式図

うに、シリカゲルの収着力のほうが大きいので  $\text{Eu}^{3+}$  が移行する速さはガラスビーズの場合に比べてゆっくりで、層での広がりが大きくなると考えられる。ガラスビーズのほうを先に進んだ  $\text{Eu}^{3+}$  はシリカゲルの層へ移動し、シリカゲルの層をゆっくり進んでくる  $\text{Eu}^{3+}$  はガラスビーズの層へ移動する。したがって図 2.14、2.15 に見られるように、はじめのピークはガラスビーズ単層のピークより遅れ、2 番目のピークはシリカゲル単層のピークより早くなる。これが 8 層になると層境界が増えるため流れと垂直な方向への物質移動は頻繁に起こり見かけ上混合が進む。  $\text{Eu}^{3+}$  は拡散され、比較的濃度が均一になり進むため図 2.16 に見られるように二つのピークが合わさるような応答になる。さらに層が増えれば混合拡散も進み、見かけ上各層での  $\text{Eu}^{3+}$  の進み方が等しくなり、その応答は 1 つの拡散特性を持つ媒体を流れたときの応答になると予想できる。

もし層と層が互いに独立していて影響を及ぼしあわないとしたら、層の数に限らずその応答は単層の応答を重ね合わせただけのものになるはずである。しかし、層の境界での物質移動は、互いの層における物質の移行に

影響を及ぼし、結果的に系全体の物質移行速度に影響する。本実験結果は、その影響は系全体に対する層の数、すなわち系全体での層と層の現れる頻度に依存していることを示している。

### 2.3.2 系の遅延効果に与える流量の影響

次に2層と8層の場合で流量を変えた場合の応答をそれぞれ図2.20、2.21に示す。流量は3.9 ml/min、1.3 ml/min、0.3 ml/minであり、Eu<sup>3+</sup>溶液の注入時間は35 s、100 s、480 sである。注入時間は各流量で同体積のEu<sup>3+</sup>溶液が注入されるように設定した。図より、2層の場合、8層の場合共にその応答に流量の違いによる差はほとんど見られないことがわかる。

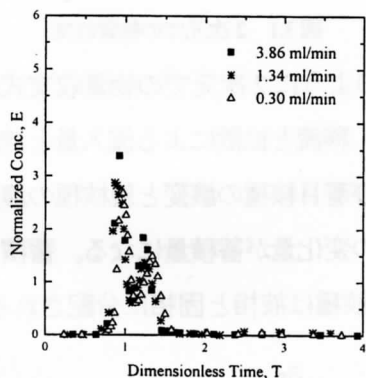


図2.20 応答に与える流量の影響 (2層)

0.3 ml/min の場合にやや違いが見られるが、これは流量が小さくなる、すなわち流速が遅くなることにより層境界での物質移動の速度が相対的に大きくなり混合がより進むためであると考えられる。このことは、2層の場合より8層の場合においてその違いが顕著に現

れていることからわかる。すなわち、2層の場合ではもともと物質移動は頻繁には起こらないため、層間の物質移動はあまり効いてこないが、8層になると頻繁になるのでその影響も大きくなって現れる。したがって、流量の違いは層境界での物質移動の強さに影響を与える。一方、移流や拡散の速度が小さくなる場合は、一般に、収着、脱着の速度を無限大 (すなわち、平衡状態) と仮定できず (有限な) 速度を考える必要がでてくる。しかし、少なくとも本実験条件では流量が小さい場合の応答と大きい場合の応答との差は小さく、応答に及ぼす流量の影響は無視できる。

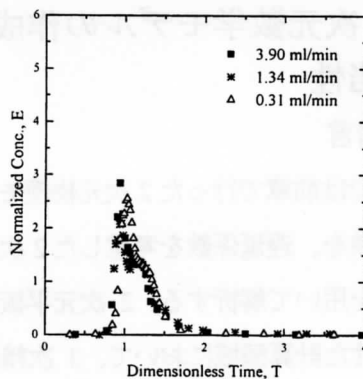


図2.21 応答に与える流量の影響 (8層)

## 2.4 結言

本章では、2次元物理モデルに流したEu<sup>3+</sup>溶液の応答を見ることにより、遅延効果の空間分布、および流量が系全体の遅延効果に与える影響について検討を行った。

ガラスビーズとシリカゲルで作った層の数を増やしていきその応答を見ることにより、層が少ない場合には2つあったピークが層を

多くすると一つになるという傾向があることがわかった。これは遅延効果の異なる層の間で濃度勾配により物質移動が起こるためだと考えられる。層の境界での物質移動は系全体の物質移行速度に影響し、その影響は系全体に対する層の数、すなわち系全体での層と層の境界の現れる頻度に依存していることを示した。また流量の影響は本実験条件内において小さく、異なる流量を設定しても、空間時間によって時間を無次元化することにより得られた応答はほぼ一致することを示した。

次章において本実験の結果を数学モデルにより解析する。

## 3 2次元数学モデルの作成とその妥当性

### 3.1 緒言

本章では前章で行った2次元物理モデルによる実験を、遅延係数を考慮した2次元数学モデルを用いて解析する。2次元平板セルに対応させた計算領域において、3次精度の上流差分法[18]により離散化した移流拡散方程式を解くことにより数値解を得る。そして、実験による応答と数値解を比較することによりガラスビーズ、シリカゲルそれぞれの遅延係数を求め、その値を数学モデル上で層状に分布させ、2章での多層による実験結果と数学モデルの計算結果とを比較し、数学モデルの妥当性について検討した。

なお、本研究で扱う流体は次の仮定が成り立つものとした。1) 非圧縮性流体であり、流体の密度、粘度は一定である。2) Darcy 則が

成り立つ。3) 混合拡散係数は方向に依存せず一定である。このことは次節における基礎方程式の誘導に際して逐次説明を加える。

## 3.2 基礎方程式

### 3.2.1 移流拡散モデルの物質収支式

地層中での核種移行のような、多孔質媒体中における物質の移動は移流、物質の濃度勾配による拡散や水力学的拡散等による[19]。

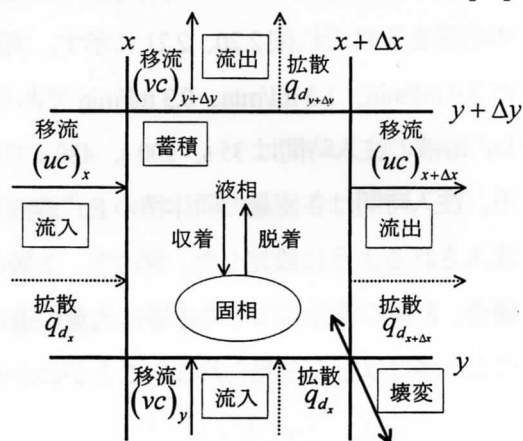


図3.1 2次元での物質収支

図3.1のように2次元での物質収支式を考えてみる。移流と拡散による流入量と流出量の差および着目核種の壊変と親核種の壊変による核種の変化量が蓄積量になる。蓄積されている核種は液相と固相に分配される。

$$\begin{aligned} \varepsilon \frac{\partial c}{\partial t} + (1 - \varepsilon) \frac{\partial s}{\partial t} \\ = - \frac{\partial q_{d,x}}{\partial x} - \frac{\partial (uc)}{\partial x} - \frac{\partial q_{d,y}}{\partial y} - \frac{\partial (vc)}{\partial y} - \lambda c + \lambda_p c_p \end{aligned} \quad (3.1)$$

ここで  $\varepsilon$  は空隙率、 $c$  は着目核種の濃度 ( $\text{kg/m}^3$ )、 $t$  は時間(s)、 $s$  は固相単位体積あたりの着目核種の質量 ( $\text{kg/m}^3$ )、 $x$ 、 $y$  はそれぞれ  $x$  方向、 $y$  方向の距離(m)、 $u$ 、 $v$  はそれぞれ



れ  $x$  方向、 $y$  方向の流速(m/s)、 $q_{d_x}$ 、 $q_{d_y}$  はそれぞれ  $x$  方向、 $y$  方向の流束(kg/m<sup>2</sup>・s)、 $\lambda$  は着目核種の崩壊定数(s<sup>-1</sup>)、 $\lambda_p$  は親核種の崩壊定数(s<sup>-1</sup>)、そして  $c_p$  は親核種の濃度(kg/m<sup>3</sup>)である。ここで Fick の法則により

$$q_{d_x} = -D_{ex} \frac{\partial c}{\partial x}, \quad q_{d_y} = -D_{ey} \frac{\partial c}{\partial y} \quad (3.2)$$

が成り立つ。ここで  $D_{ex}$  と  $D_{ey}$  は各々の方向における混合拡散係数(m<sup>2</sup>/s)である。いま、扱う流体を非圧縮性と仮定し、流体の密度が時間によらず一定とすると、連続の式

$$\frac{\partial u}{\partial x} + \frac{\partial v}{\partial y} = 0 \quad (3.3)$$

が成り立つ。したがって式(3.1)は混合拡散係数の異方性を無視すると ( $D_e = D_{ex} = D_{ey}$ )

$$\begin{aligned} \varepsilon \frac{\partial c}{\partial t} + (1 - \varepsilon) \frac{\partial s}{\partial t} \\ = D_e \left( \frac{\partial^2 c}{\partial x^2} + \frac{\partial^2 c}{\partial y^2} \right) - u \frac{\partial c}{\partial x} - v \frac{\partial c}{\partial y} - \lambda c + \lambda_p c_p \end{aligned} \quad (3.4)$$

と書き換えることができる。また、核種の液相と固相の間の平衡が成り立つとき、 $s$  は

$$s = \rho_s K_d c \quad (3.5)$$

と表せる。ここで  $\rho_s$  は固相の密度(kg/m<sup>3</sup>)、 $K_d$  は分配係数(m<sup>3</sup>/kg)である。遅延係数  $R_d$  を次のように定義するとき、

$$R_d = 1 + \frac{(1 - \varepsilon) \rho_s}{\varepsilon} K_d \quad (3.6)$$

2次元の物質収支式は

$$\begin{aligned} \varepsilon R_d \frac{\partial c}{\partial t} \\ = D_e \left( \frac{\partial^2 c}{\partial x^2} + \frac{\partial^2 c}{\partial y^2} \right) - u \frac{\partial c}{\partial x} - v \frac{\partial c}{\partial y} - \lambda c + \lambda_p c_p \end{aligned} \quad (3.7)$$

と表せる。本実験条件では長半減期核種の代わりに安定同位体の  $\text{Eu}^{3+}$  を用いているので核種の崩壊は起こらず  $\lambda$  および  $\lambda_p$  は 0 となり、その場合の物質収支式は次のようになる。

$$\varepsilon R_d \frac{\partial c}{\partial t} = D_e \left( \frac{\partial^2 c}{\partial x^2} + \frac{\partial^2 c}{\partial y^2} \right) - u \frac{\partial c}{\partial x} - v \frac{\partial c}{\partial y} \quad (3.8)$$

解析の簡便化のために式(3.8)を無次元化する。用いる無次元数は次の通りである。

$$\begin{aligned} T = \frac{t}{t^*}, \quad X = \frac{x}{x_1}, \quad Y = \frac{y}{x_1}, \\ C = \frac{c - c_b}{c_m - c_b}, \quad U = \frac{u}{u^*}, \quad V = \frac{v}{u^*} \end{aligned} \quad (3.9)$$

ここで  $t^*$  は代表時間(s)、 $x_1$  は溶液の注入、流出点間の距離(m)、 $c_m$  は核種の注入濃度(kg/m<sup>3</sup>)、 $c_b$  は注入核種の背後 (background) 濃度(kg/m<sup>3</sup>)、そして  $u^*$  は代表流速(m/s)である。式(3.9)を式(3.8)に代入して計算すると

$$\begin{aligned} \frac{\varepsilon R_d}{t^*} \frac{\partial C}{\partial T} \\ = \frac{D_e}{x_1^2} \left( \frac{\partial^2 C}{\partial X^2} + \frac{\partial^2 C}{\partial Y^2} \right) - \frac{U u^*}{x_1} \frac{\partial C}{\partial X} - \frac{V u^*}{x_1} \frac{\partial C}{\partial Y} \end{aligned} \quad (3.10)$$

式(3.10)の両辺を  $u^*/x_1$  で割る。

$$\frac{\varepsilon x_1 R_d}{t^* u^*} \frac{\partial C}{\partial T} = \frac{D_e}{x_1 u^*} \left( \frac{\partial^2 C}{\partial X^2} + \frac{\partial^2 C}{\partial Y^2} \right) - U \frac{\partial C}{\partial X} - V \frac{\partial C}{\partial Y} \quad (3.11)$$

ここで

$$\overline{R_d} = \frac{R_d}{R_d^*}, \quad t^* = \frac{\varepsilon x_1 R_d^*}{u^*}, \quad P_e = \frac{u^* x_1}{D_e} \quad (3.12)$$

とおく。 $R_d^*$ は遅延係数の代表値、 $P_e$ はペクレ数である。式(3.12)を式(3.10)に代入して計算すると

$$\overline{R_d} \frac{\partial C}{\partial T} = \frac{1}{P_e} \left( \frac{\partial^2 C}{\partial X^2} + \frac{\partial^2 C}{\partial Y^2} \right) - U \frac{\partial C}{\partial X} - V \frac{\partial C}{\partial Y} \quad (3.13)$$

となり、式(3.8)が無次元化できる。

### 3.2.2 ポテンシャルの式

2次元物理モデルの形態が図3.2に示すように流入口、流出口が狭くなっている。したがって、この計算領域において圧力分布は1次元的不是ではない。そこで(3.13)式を解く前に圧力分布を求める必要がある。

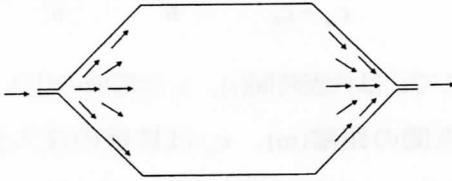


図3.2 物理モデル内の流れの模式図

いま、扱う流体は非圧縮性であり、流体の密度、粘度は一定であると仮定するので連続の式

$$\frac{\partial u}{\partial x} + \frac{\partial v}{\partial y} = 0 \quad (3.14)$$

が成り立つ。また、Darcy則が成り立つとき、x方向、y方向の流速は各々、

$$u = -\frac{k_x}{\mu} \frac{\partial p}{\partial x} \quad (3.15)$$

$$v = -\frac{k_y}{\mu} \frac{\partial p}{\partial y} \quad (3.16)$$

となる。ここで $\mu$ は流体の粘度(Pa·s)、 $k_x$ はx方向の浸透率(m<sup>2</sup>)、 $k_y$ はy方向の浸透率(m<sup>2</sup>)、そして $p$ は圧力(Pa)である。式(3.15)、(3.16)を式(3.14)に代入する。

$$\frac{\partial}{\partial x} k_x \frac{\partial p}{\partial x} + \frac{\partial}{\partial y} k_y \frac{\partial p}{\partial y} = 0 \quad (3.17)$$

いま、式(3.9)および次式で定義する無次元数を用いて式(3.17)を無次元化することを考える。

$$K_x = \frac{k_x}{k^*}, \quad K_y = \frac{k_y}{k^*} \quad (3.18)$$

ここで $k^*$ は浸透率の代表値である。まず式(3.15)を無次元化する。式(3.15)に式(3.9)、(3.18)を代入する。

$$U u^* = -\frac{K_x k^*}{\mu} \frac{\partial p}{\partial X} \frac{\partial X}{\partial x}$$

変形して

$$U = -K_x \frac{\partial p}{\partial X} \frac{k^*}{\mu u^* x_1} \quad (3.19)$$

同様に式(3.16)は

$$V = -K_y \frac{\partial p}{\partial Y} \frac{k^*}{\mu u^* x_1} \quad (3.20)$$

ここで、 $P$ を次のように定義する。

$$P = \frac{k^* (p - p_0)}{\mu x_1} \frac{1}{u^*} \quad (3.21)$$

ここで $p_0$ は入口での圧力(Pa)である。式(3.21)を変形して式(3.19)に代入し計算する。

$$U = -K_x \frac{\partial P}{\partial X} \quad (3.22)$$

同様に式(3.20)は

$$V = -K_y \frac{\partial P}{\partial Y} \quad (3.23)$$

と無次元化できる。つぎに式(3.9)、(3.18)、(3.21)を用いて式(3.17)を無次元化する。

$$\frac{1}{x_1} \frac{\partial}{\partial X} K_x k^* \frac{\partial P}{\partial X} \frac{\mu x_1 u^*}{k^*} \frac{1}{x_1} + \frac{1}{x_1} \frac{\partial}{\partial Y} K_y k^* \frac{\partial P}{\partial Y} \frac{\mu x_1 u^*}{k^*} \frac{1}{x_1} = 0$$

計算し直すと

$$\frac{\partial}{\partial X} K_x \frac{\partial P}{\partial X} + \frac{\partial}{\partial Y} K_y \frac{\partial P}{\partial Y} = 0 \quad (3.24)$$

となり、これが無次元化したポテンシャルの式である。式(3.24)と式(3.13)を離散化して数値計算をする。

### 3.3 基礎方程式の離散化

#### 3.3.1 ポテンシャル式の離散化

本研究で扱う移流拡散モデルの解を得るために、上で得られた無次元化した基礎方程式を離散化する必要がある。まず計算領域での圧力分布を得るために、図 3.3 に示すような  $\Delta X$ 、 $\Delta Y$  に分割した差分格子を用いてポテンシャル式(3.24)を離散化する。i、j はそれぞれ X、Y 方向の格子番号である。

いま

$$\begin{aligned} \alpha_{i+\frac{1}{2},j} &= K_{i+\frac{1}{2},j} \frac{P_{i+1,j} - P_{i,j}}{\Delta X}, & \alpha_{i-\frac{1}{2},j} &= K_{i-\frac{1}{2},j} \frac{P_{i,j} - P_{i-1,j}}{\Delta X} \\ \alpha_{i,j+\frac{1}{2}} &= K_{i,j+\frac{1}{2}} \frac{P_{i,j+1} - P_{i,j}}{\Delta Y}, & \alpha_{i,j-\frac{1}{2}} &= K_{i,j-\frac{1}{2}} \frac{P_{i,j} - P_{i,j-1}}{\Delta Y} \end{aligned} \quad (3.28)$$

ここで、 $K_{i,j}$  と  $P_{i,j}$  は各点での無次元浸透率と無次元圧力である。格子境界点での無次元

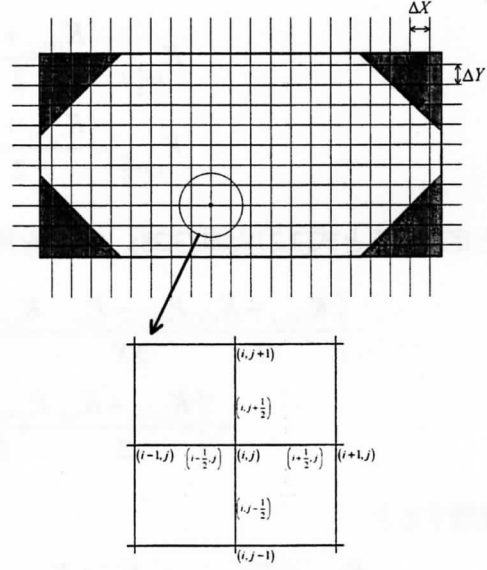


図 3.3 差分格子

$$\alpha_x = K_x \frac{\partial P}{\partial X}, \quad \alpha_y = K_y \frac{\partial P}{\partial Y} \quad (3.25)$$

とすると式(3.24)は

$$\frac{\partial \alpha_x}{\partial X} + \frac{\partial \alpha_y}{\partial Y} = 0 \quad (3.26)$$

と書ける。これを中心差分を用いて離散化すると

$$\frac{\alpha_{i+\frac{1}{2},j} - \alpha_{i-\frac{1}{2},j}}{\Delta X} + \frac{\alpha_{i,j+\frac{1}{2}} - \alpha_{i,j-\frac{1}{2}}}{\Delta Y} = 0 \quad (3.27)$$

となる。ここで式(3.25)より各格子境界点での  $\alpha$  が次のように書ける

浸透率を

$$\begin{aligned} K_{i+\frac{1}{2},j} &= \frac{K_{i+1,j} + K_{i,j}}{2}, & K_{i-\frac{1}{2},j} &= \frac{K_{i,j} + K_{i-1,j}}{2} \\ K_{i,j+\frac{1}{2}} &= \frac{K_{i,j+1} + K_{i,j}}{2}, & K_{i,j-\frac{1}{2}} &= \frac{K_{i,j} + K_{i,j-1}}{2} \end{aligned} \quad (3.29)$$

と定義すると式(3.27)は式(3.28)、(3.29)を用いて次のように書き直すことができる。

$$\begin{aligned} & \left\{ \frac{K_{i+1,j} + K_{i,j}}{2} \frac{P_{i+1,j} - P_{i,j}}{\Delta X} - \frac{K_{i,j} + K_{i-1,j}}{2} \frac{P_{i,j} - P_{i-1,j}}{\Delta X} \right\} \frac{1}{\Delta X} \\ & + \left\{ \frac{K_{i,j+1} + K_{i,j}}{2} \frac{P_{i,j+1} - P_{i,j}}{\Delta Y} - \frac{K_{i,j} + K_{i,j-1}}{2} \frac{P_{i,j} - P_{i,j-1}}{\Delta Y} \right\} \frac{1}{\Delta Y} = 0 \end{aligned}$$

整理すると

$$\begin{aligned} & \frac{K_{i+1,j} + K_{i,j}}{2(\Delta X)^2} P_{i+1,j} + \frac{K_{i,j} + K_{i-1,j}}{2(\Delta X)^2} P_{i-1,j} + \frac{K_{i,j+1} + K_{i,j}}{2(\Delta Y)^2} P_{i,j+1} + \frac{K_{i,j} + K_{i,j-1}}{2(\Delta Y)^2} P_{i,j-1} \\ & = \left\{ \frac{K_{i+1,j} + K_{i,j}}{2(\Delta X)^2} + \frac{K_{i,j} + K_{i-1,j}}{2(\Delta X)^2} + \frac{K_{i,j+1} + K_{i,j}}{2(\Delta Y)^2} + \frac{K_{i,j} + K_{i,j-1}}{2(\Delta Y)^2} \right\} P_{i,j} \end{aligned} \quad (3.30)$$

ここで次のような定義をする。

$$A_E = \frac{K_{i+1,j} + K_{i,j}}{2(\Delta X)^2}, \quad A_W = \frac{K_{i,j} + K_{i-1,j}}{2(\Delta X)^2}, \quad A_N = \frac{K_{i,j+1} + K_{i,j}}{2(\Delta Y)^2}, \quad A_S = \frac{K_{i,j} + K_{i,j-1}}{2(\Delta Y)^2} \quad (3.31)$$

これを式(3.30)に代入して計算し直すと

$$P_{i,j} = \frac{A_E P_{i+1,j} + A_W P_{i-1,j} + A_N P_{i,j+1} + A_S P_{i,j-1}}{A_E + A_W + A_N + A_S} \quad (3.32)$$

となり、圧力場を与える離散式が得られる。

図 3.4 に示す計算領域 ( $0 \leq X \leq X_1$ 、 $0 \leq Y \leq Y_1$ ) において計算を行う。本研究では実験装置にあわせて  $X_1 = 1.0$ 、 $Y_1 = 0.5$  とした。流入口は  $Y_{in} \leq Y \leq Y_{ind}$  ( $X = 0$ )、流出口は  $Y_{out} \leq Y \leq Y_{outd}$  ( $X = X_1$ ) である。境界条件および初期条件を以下に記す。

・  $Y = 0$ 、 $Y = Y_1$  ( $0 \leq X \leq X_1$ ) において  $\frac{\partial P}{\partial Y} = 0$

・  $X = 0$  ( $0 \leq Y < Y_{in}$ 、 $Y_{ind} < Y \leq Y_1$ )、 $X = X_1$  ( $0 \leq Y < Y_{out}$ 、 $Y_{outd} < Y \leq Y_1$ ) において

$$\frac{\partial P}{\partial X} = 0$$

・  $Y_{in} \leq Y \leq Y_{ind}$  ( $X = 0$ ) において  $P_0 = 1.0$ 、

$Y_{out} \leq Y \leq Y_{outd}$  ( $X = X_1$ ) において  $P_1 = 0$

また、2次元物理モデルの6角形の形態を表すために、図 3.4 の四隅の斜線部分に微小な浸透率を与え流体が流れないように設定した。ガラスビーズとシリカゲルの浸透率はそれぞれ、1次元カラム実験により求めた値を平均値で割って無次元化した値を与えた。この境界条件と浸透率を用いて相対誤差が  $10^{-7}$  以内に収束するまで計算を繰り返す。

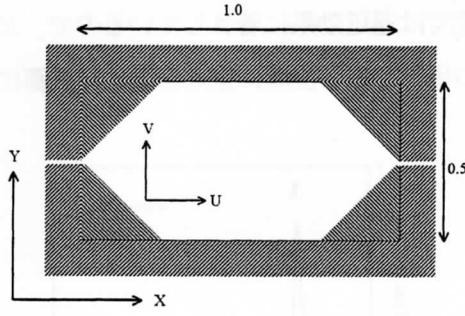


図 3.4 計算領域

次精度の上流差分法を用いる[18]。移流項を一次精度上流差分法により離散化すると数値拡散項と呼ばれる誤差項が生じる。ペクレ数の大きな計算において、この数値拡散項の影響を除くためには格子を細かくしなくてはならないがそれは現実的ではない。そこで、この数値拡散項の影響を小さくするために三次精度上流差分法を用いる。

式(3.13)を三次精度上流差分法により離散化する。

### 3.3.2 物質収支式の離散化

無次元化した 2 次元の物質収支式(3.13)を上流差分法を用いて離散化する。この際、三

$$\begin{aligned}
 & \frac{C_{i,j}^n - C_{i,j}}{R_d \Delta T} \\
 &= -U_i \frac{-C_{i+2,j} + 8C_{i+1,j} - 8C_{i-1,j} + C_{i-2,j}}{12\Delta X} - \frac{|U_i|(\Delta X)^3}{12} \frac{C_{i+2,j} - 4C_{i+1,j} + 6C_{i,j} - 4C_{i-1,j} + C_{i-2,j}}{(\Delta X)^4} \\
 & -V_j \frac{-C_{i,j+2} + 8C_{i,j+1} - 8C_{i,j-1} + C_{i,j-2}}{12\Delta Y} - \frac{|V_j|(\Delta Y)^3}{12} \frac{C_{i,j+2} - 4C_{i,j+1} + 6C_{i,j} - 4C_{i,j-1} + C_{i,j-2}}{(\Delta Y)^4} \\
 & + \frac{1}{P_e} \left( \frac{C_{i+1,j} - 2C_{i,j} + C_{i-1,j}}{(\Delta X)^2} + \frac{C_{i,j+1} - 2C_{i,j} + C_{i,j-1}}{(\Delta Y)^2} \right)
 \end{aligned} \quad (3.33)$$

ここで  $C_{i,j}$  は無次元時間  $T$  での格子中心点の無次元濃度、 $C_{i,j}^n$  は微小時間  $\Delta T$  後の格子中心点の無次元濃度、 $U_i$  は無次元流速の  $X$  成

分、そして  $V_j$  は無次元流速の  $Y$  成分である。式(3.33)を整理する。

$$\begin{aligned}
 C_{i,j}^n = & \frac{1}{R_d} \frac{\Delta T}{\Delta X} \left\{ \frac{U_i - |U_i|}{12} C_{i+2,j} + \left( \frac{1}{P_e(\Delta X)} - \frac{8U_i - 4|U_i|}{12} \right) C_{i+1,j} \right. \\
 & \left. + \left( \frac{1}{P_e(\Delta X)} + \frac{8U_i + 4|U_i|}{12} \right) C_{i-1,j} - \frac{U_i + |U_i|}{12} C_{i-2,j} \right\} \\
 & + \frac{1}{R_d} \frac{\Delta T}{\Delta Y} \left\{ \frac{V_j - |V_j|}{12} C_{i,j+2} + \left( \frac{1}{P_e(\Delta Y)} - \frac{8V_j - 4|V_j|}{12} \right) C_{i,j+1} \right. \\
 & \left. + \left( \frac{1}{P_e(\Delta Y)} + \frac{8V_j + 4|V_j|}{12} \right) C_{i,j-1} - \frac{V_j + |V_j|}{12} C_{i,j-2} \right\} \\
 & - \left\{ \left( \frac{|U_i|}{2\Delta X} + \frac{1}{P_e} \frac{2}{(\Delta X)^2} + \frac{|V_j|}{2\Delta Y} + \frac{1}{P_e} \frac{2}{(\Delta Y)^2} \right) \frac{\Delta T}{R_d} - 1 \right\} C_{i,j}
 \end{aligned} \quad (3.34)$$

式(3.34)が式(3.13)の離散化したものである。

これを図 3.4 に示す計算領域において、以下に示す境界条件および初期条件を用いて解く。

・  $Y = 0$ 、 $Y = Y_1$  ( $0 \leq X \leq X_1$ ) において

$$\frac{\partial C}{\partial Y} = 0$$

・  $X = 0$  ( $0 \leq Y < Y_{in}$ 、 $Y_{ind} < Y \leq Y_1$ )、 $X = X_1$  ( $0 \leq Y < Y_{out}$ 、 $Y_{outd} < Y \leq Y_1$ ) において

$$\frac{\partial C}{\partial X} = 0$$

・ 流出口  $Y_{out} \leq Y \leq Y_{outd}$  ( $X = X_1$ ) において

$$\frac{\partial C}{\partial X} = 0, V = 0$$

・ 流入口  $Y_{in} \leq Y \leq Y_{ind}$  ( $X = 0$ ) において Closed Vessel の境界条件[20-22]より

$$C_{X=0-} = C_{X=0+} - \frac{1}{P_e} \left. \frac{\partial C}{\partial X} \right|_{X=0+}, V = 0$$

・ 初期において  $C = 0$ 、入力は  $0 \leq T \leq T_{in}$  において  $C_{X=0-} = 1.0$ 、 $T_{in} < T$  において  $C_{X=0-} = 0$ 。ここで  $C_{X=0-} = \lim_{X \rightarrow 0-} C$ 、 $C_{X=0+} = \lim_{X \rightarrow 0+} C$ 、そして  $T_{in}$  は溶液の注入時間である。本研究では  $T_{in} = 0.01$  とした。なお、計算により得られた応答の物質収支を計算することにより誤差が 3%以内に収まることを確認した。

### 3.4 実験結果との比較および検討

以上のような数学モデルによる計算結果と 2 章の実験結果とを比較する。差分格子は横  $100 \times$  縦  $50$  に区切り、四隅の無次元浸透率は  $10^{-4}$  を与え、 $\Delta T = 5 \times 10^{-5}$  とした。図 3.5、3.6 にそれぞれガラスビーズ 1 層、シリカゲル 1 層の実験結果と数値計算の結果を示す。本研

究では遅延効果に着目しているので、ピークの現れている位置に重点を置く。計算により

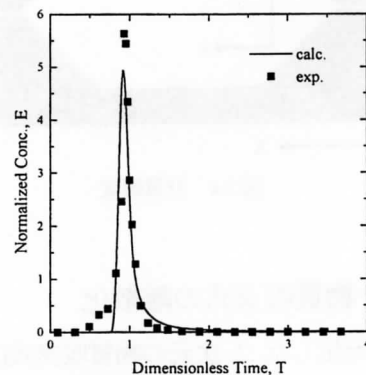


図 3.5 実験結果と計算値の比較  
(ガラスビーズ 1 層)

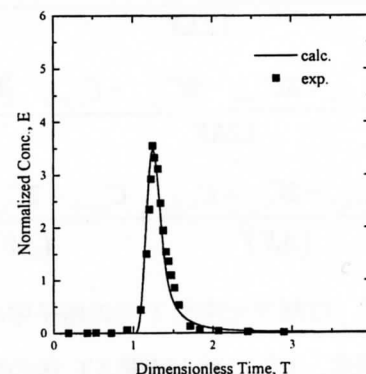


図 3.6 実験結果と計算値の比較  
(シリカゲル 1 層)

得た応答のピークの位置が実験結果のピークの位置と同じになるように遅延係数を変化させて計算を行い、ガラスビーズ、シリカゲルそれぞれの遅延係数を得た。この際混合拡散係数、すなわちペクレ数は一様に  $P_e = 2100$  とした。この値は代表長さを流入口から流出口までの距離とした時の値であるが、これを充填粒子の平均粒径を代表長さとして計算し直すと 1.2 となる。これは従来の報告[20]に矛

盾しない。本研究ではガラスビーズの遅延係数が1.43、シリカゲルの遅延係数が2.14となった。なお、このガラスビーズの遅延係数から式(3.6)を使って分配係数 $K_d$ を求めたところ  $1.15 \times 10^{-4} \text{ m}^3/\text{kg}$  であった。この値を Kitamura らが求めた値[23]と比較したのが図3.7である。Kitamura らの実験は石英に対する  $\text{Eu}^{3+}$  の分配係数をバッチ法により求めた値であるが、石英とガラスビーズで成分にほとんど違いがないのでその収着機構にも差はないと考え比較した。図3.7より物理モデルによる実験結果と本数学モデルによる計算結果を比較して得た遅延係数は妥当であるといえる。

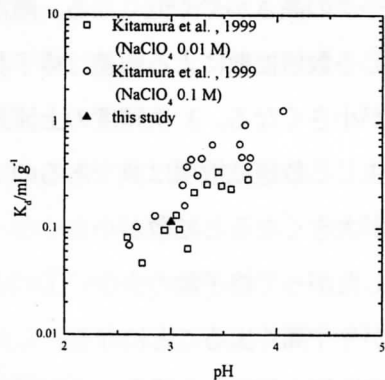


図3.7  $\text{Eu}^{3+}$ の分配係数

つぎに、得られた遅延係数を2層、4層、8層に分布させ計算して得た応答と実験結果の比較を図3.8～3.10に示す。実験結果と同様に、2層、4層では2つあったピークが8層では互いに近づくという傾向が見られる。これらの図より、計算により求めた応答は実験結果をおおよそ表していることがわかる。なお、本数学モデルの数値計算上の取り扱いについての妥当性を次のように検討した。ま

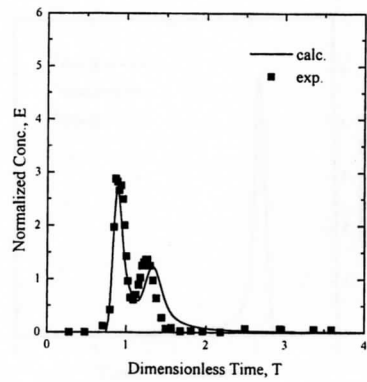


図3.8 実験結果と計算値の比較（2層）

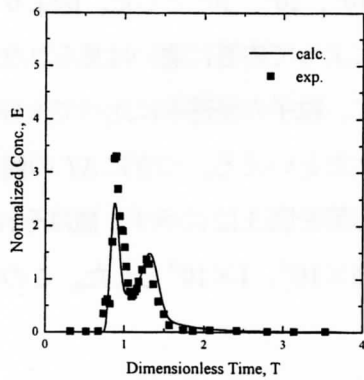


図3.9 実験結果と計算値の比較（4層）

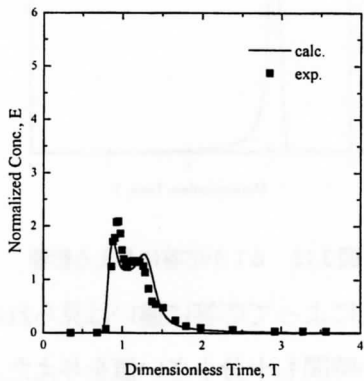


図3.10 実験結果と計算値の比較（8層）

ず2次元物理モデルの形態を表すために四隅に与えた無次元浸透率の値を変化させた。



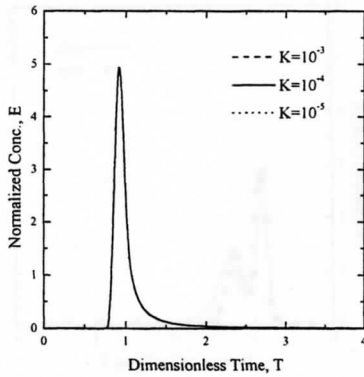


図 3.11 四隅の浸透率が応答に与える影響

各々の応答を図 3.11 に示す。浸透率の値をそれぞれ  $10^{-3}$ 、 $10^{-4}$ 、 $10^{-5}$  とした。図より浸透率の変化によって応答に違いは見られない。したがって、粒子の浸透率に比べて十分微小な値を与えたといえる。つぎに  $\Delta T$  の値を変化させた応答を図 3.12 に示す。値はそれぞれ  $1 \times 10^{-4}$ 、 $5 \times 10^{-5}$ 、 $1 \times 10^{-5}$  とした。この場合も

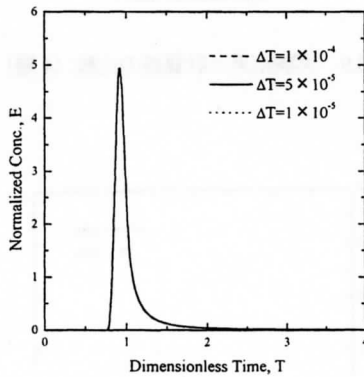


図 3.12  $\Delta T$  が応答に与える影響

値の変化によって応答に違いは見られないので、微小時間も十分小さい値を与えたといえる。同様に差分格子の数、すなわち  $\Delta X$ 、 $\Delta Y$  の値を変化させた応答を図 3.13 に示す。①の実線で表した応答が差分格子  $100 \times 50$  のときの応答、②の点線で表した応答が  $200 \times 100$

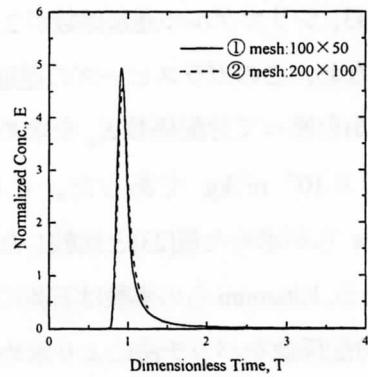


図 3.13 差分格子の大きさが応答に与える影響

のときの応答である。(ここでは無次元距離  $X_1 = 1.0$ 、 $Y_1 = 0.5$  を各々 100 分割と 50 分割した場合を  $100 \times 50$ 、200 分割と 100 分割した場合を  $200 \times 100$  と称す) 格子数が増えるとピークの高さがやや低くなる。離散化の際に生じる数値拡散による誤差は格子数の多いほうが小さくなる。3 次精度の上流差分法により生じる数値拡散項は負であるので、この誤差が大きくなると拡散が小さくなって現れる。したがって格子数の少ない①の応答のピークがやや高く出ることになる。しかし計算の現実性等を加味した場合、また遅延効果を評価するという場合において、①と②の応答にそれほど違いはないので、本研究で使用した格子数での計算は妥当であるといえる。次に混合拡散係数の異方性についての検討を行う。図 3.14～3.16 にガラスビーズ 1 層、ガラスビーズとシリカゲル 2 層、8 層それぞれの場合の実験値、混合拡散係数の異方性を考慮しない場合 (calc. 1)、考慮した場合 (calc. 2) の計算値を示す。従来の実験により、均一・等方的な媒体における Y 方向の分散長は X 方

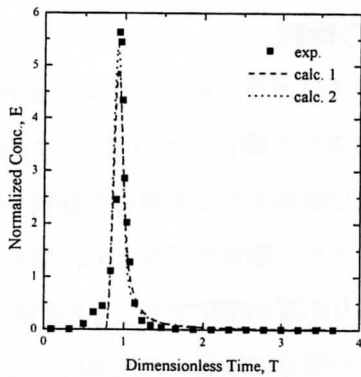


図 3.14 混合拡散係数の異方性 (ガラスビーズ 1 層)

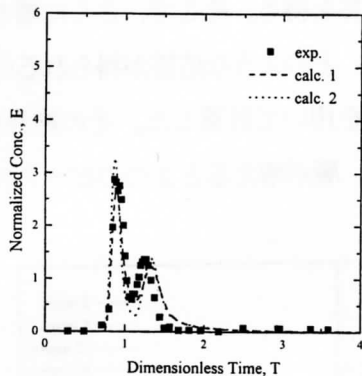


図 3.15 混合拡散係数の異方性 (2 層)

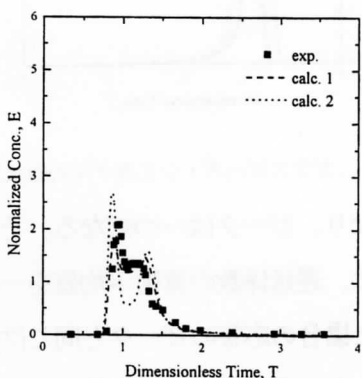


図 3.16 混合拡散係数の異方性 (8 層)

向の分散長の 0.1 倍であることを得た例もある[24]。分散長は充填媒体の微細な空隙構造や流速などに依存するので混合拡散係数の異

方性を考慮する必要がある場合もある。そこでペクレ数が等方的な場合と Y 方向のペクレ数を X 方向のペクレ数の 10 倍にした場合の応答を比較してみる。1 層の場合、異方性のある場合とない場合でその応答にほとんど差はないが 2 層、8 層になると、いずれの場合もペクレ数に異方性がある場合の応答はピークが高く、2 つのピークの間において  $\text{Eu}^{3+}$  が検出されずそれぞれのピークがはっきりするようになり、実験結果と合致しなくなる。ペクレ数が大きいということは混合拡散の影響が小さくなるということである。Y 方向への物質移動は移流による部分が小さく主に混合拡散により起こるので、混合拡散の影響が小さければ Y 方向の物質移動は少なく、したがってピークも高くなる。Y 方向のペクレ数が X 方向よりも大きくなることでさらに Y 方向への物質移動は少なくなりピークはより一層高くなる。2 層、8 層にした場合、遅延効果の違いから層間において濃度勾配が生じ物質移動が起こるが、Y 方向のペクレ数が大きくなることでその影響は大きく現れず、したがって 2 つのピークが独立していることになる。しかし実験結果を見ると、2 層、8 層において層の境界での物質移動は頻繁に起こり、拡散の影響も大きくなっている。したがって、本研究のように遅延効果が一様でない系においてはむしろ混合拡散係数は等方的であるとしたほうがより実験結果を再現できると考えられる。

### 3.5 結言

本章では、2次元物理モデルによる実験を、遅延係数を考慮した2次元数学モデルを用いて解析した。3次精度の上流差分法により離散化した移流拡散方程式を解くことにより数値解を得、実験による応答と数値解を比較しガラスビーズ、シリカゲルそれぞれの遅延係数を求めた。その値を数学モデル上で層状に分布させた計算結果と、2章での多層による実験結果との比較、およびパラメータを変化させたそれぞれの応答の比較により数学モデルの妥当性について検討した。その結果、計算値は実験結果をよく再現し、本数学モデルの妥当性が示された。また、異なる遅延係数を持つ媒体が空間的に分布している場合、混合拡散係数は等方的に扱うほうがより実験結果を再現するということも確認された。

次章において、この数学モデルを用い、遅延係数の空間分布について更なる考察を行う。

## 4 数学モデルによる遅延係数の空間分布の検討

### 4.1 緒言

前章にて妥当性の確認された数学モデルを用いて、遅延係数の空間分布が系の遅延効果に与える影響について整理する。2次元平面内で遅延係数が層状に分布する場合、および確率密度関数を用いて遅延係数を分布させた場合の応答を整理し、その分布と系全体の遅延効果との関係を明らかにする。

### 4.2 ガラスビーズとシリカゲルの層分布での検討

これまでにガラスビーズとシリカゲルを層状に分布させた場合について、2次元物理モデルおよび数学モデルを用いた検討を行った。物理モデル、数学モデルともに層を増やすことにより応答が変化することがわかった。層が少ない場合には個々の媒体による2つのピークがはっきりと確認されるが、層が増えると2つのピークは低くなって近づき、なだらかな応答を得る。そこで、さらに層を増やした場合、どのような応答が得られるのか数学モデルを用いて計算した。その結果を図4.1に示す。層が増えると2つのピークの境が不

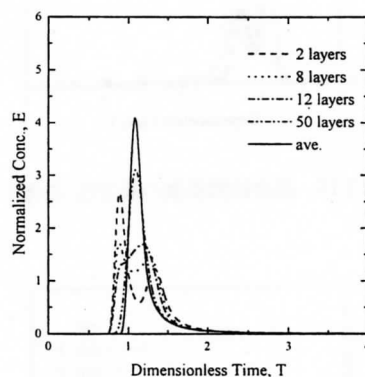


図4.1 ガラスビーズ・シリカゲルの層状分布

明確になり、ピークは一つになる。その現れる位置は、遅延係数の算術平均値を一様に分布させた場合の応答のピークと同じ位置になる。ピークの高さが算術平均値の応答のピークほど高くないのは、層境界が存在することによりそこで濃度勾配による流れに垂直な方向（Y方向）への物質移動が生じるためである。それにより、分布が一様な場合には

Y 方向への拡散が少なく高いピークが現れているのが、層状分布の場合には混合拡散が進んでピークが低くなる。すなわち、流れに垂直な方向の遅延係数の分布の頻度、言い替えれば層間の物質移動の頻度が応答に大きな影響を与える。

### 4.3 遅延係数が層状分布している際の計算による応答

様々な遅延係数を用いて、それらを層状に分布させその応答を見定める。なお本節で用いる遅延係数はその算術平均値を用いて無次元化したもので、算術平均値はいずれの場合も 1 とする。また無次元浸透率は一様に 1 とし、ペクレ数は地下において取りうる値[3]として 500 とし、異方性はないとして計算した。その結果を図 4.2～4.4 に示す。いずれの図も

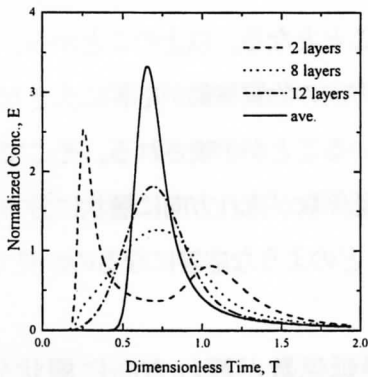


図 4.2 2つの標準偏差が 0.9 の遅延係数を層状に分布した応答

応答は 2 層、8 層、12 層、算術平均値を一様に分布させた場合の応答である。無次元の遅延係数は図 4.2 が 0.1 と 1.9、図 4.3 が 0.5 と 1.5、図 4.4 が 0.8 と 1.2 である。設定した 2

つの遅延係数の差を算術平均値 1 に対する標準偏差  $\sigma$  により表すとそれぞれの標準偏差は 0.9、0.5、0.2 である。

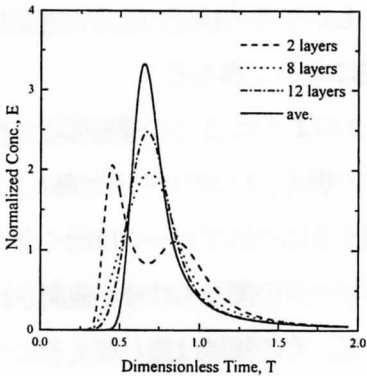


図 4.3 2つの標準偏差が 0.5 の遅延係数を層状に分布した応答

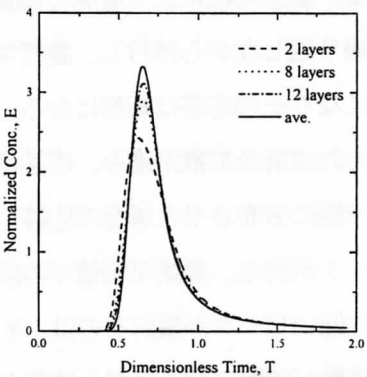


図 4.4 2つの標準偏差が 0.2 の遅延係数を層状に分布した応答

ここで、標準偏差 0.9 という値はどの程度の分布を表しうるのかを確認する。例えば 2 つの遅延係数のうち、小さい方を 1 (遅延効果なし)、大きい方を  $10^3$  とするとその算術平均値は  $0.5 \times 10^3$  となる。この値で割った無次元遅延係数はそれぞれ  $2 \times 10^3$  と 2 になり、標準偏差は 1 よりわずかに小さい値をとる。したがって、標準偏差 0.9 という値は遅延係数

のもつ相当広いばらつきを覆うことができる。

それぞれの遅延係数の組を設定した応答を見ると、いずれの場合も共通して層が増えると2つのピークが近づくという傾向が見られる。しかしその接近の仕方は遅延係数の標準偏差によって異なる。

図4.2のように、2つの遅延係数の標準偏差が大きい場合、2つのピークは離れて現れる。層が増えるにつれてピークは低くなり、その2つのピークの間でも核種が観測される領域が現れる。その領域は層が増えるにつれ大きくなり、やがてピークは1つになる。遅延係数の差が大きいので、ピークは離れて現れるが層間での濃度勾配は大きく物質移動が頻繁に起こる。濃度勾配により層間で物質のやり取りを繰り返しながら移行し、濃度勾配はなだらかになりその応答は矩形になる。さらに層が増えれば混合拡散が進み、応答は算術平均値を一様に分布させた場合の応答と同じ位置にピークが出る。算術平均値での応答のピークより低いピークが現れるのは、Y方向への物質移動が頻繁に起こり混合拡散が進むためである。

つぎに、2つの遅延係数の標準偏差が小さい場合、2つのピークは近い位置に現れる。図4.4のように2層の段階で既にピークが1つになって現れるような応答を持つ。これは、遅延係数に差がないので、それぞれの層を同じように物質は移行し、ピークの区別がつかないためである。また層境界での濃度勾配もほとんどないので、Y方向への物質移動がこらず拡散しないため、ピークの高さは算術

平均値を一様に分布させた時の応答に近くなる。

したがって、遅延効果の異なる媒体が層状に存在している場合の系全体の応答を考える上で重要なことは、分布する遅延係数の標準偏差と、評価する系に対する層の細かさである。収着力に差がなく遅延効果に違いがないような媒体が隣接する際には、その系としての応答は分布の頻度に関わらず、すぐさま算術平均値を以って近似できる。しかし析出物などの性質、あるいは地下水の性質等の違いによって遅延効果が大幅に違うような媒体が隣接する場合、その分布が偏っているならばその移行はそれぞれの媒体を加味したものでなければならないが、細かく分布していればその移行は算術平均値で予測することができる。ただし層間の物質移動が盛んに起こるため、低濃度の物質が長い期間にわたって検出されることとなる。以上のことから、流れと垂直な方向の物質移動が応答に大きな影響を与えていることが示唆される。そこで次節にて、遅延係数が流れ方向に層状に分布している場合、どのような応答になるのか見てみる。

#### 4.4 遅延係数が流れ方向に層状分布している場合の応答

図4.5に示すように、遅延係数を流れ方向に2層、8層、12層と分布させた応答を比較してみる。なお図は8層の場合である。遅延係数はその算術平均値を用いて無次元化したもので、算術平均値はいずれの場合も1とする。また無次元浸透率は一様に1とし、ペク

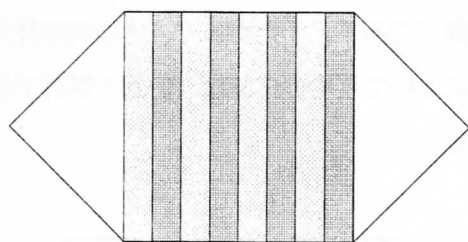


図 4.5 流れ方向の遅延係数の層状分布

レ数は 500 で異方性はないとして計算した。応答を図 4.6、4.7 に示す。設定した無次元遅延係数はそれぞれ、図 4.6 の場合が 0.05 と 1.95、図 4.7 の場合が 0.8 と 1.2 で標準偏差は 0.95 と 0.2 である。応答はどちらの場合も層の数

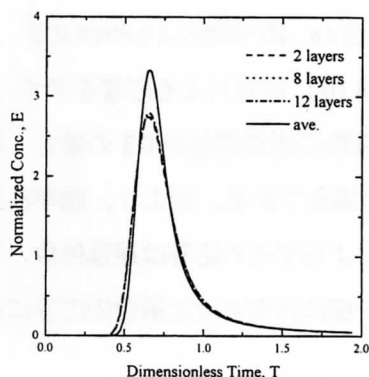


図 4.6 2つの標準偏差が 0.95 の遅延係数を流れ方向に層状分布させた応答

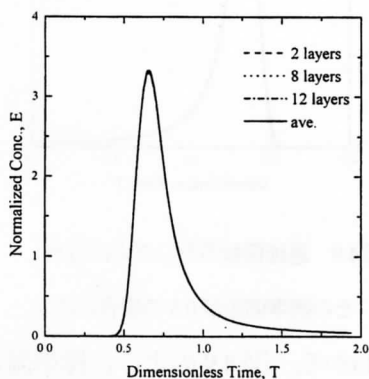


図 4.7 2つの標準偏差が 0.2 の遅延係数を流れ方向に層状分布させた応答

によらず算術平均値を一樣に分布した場合の応答とほとんど違いがない。2 つの遅延係数の差が非常に大きい場合においても、平均の応答に比べればややピークが下がり、混合拡散が生じたことを示しているが、層の数に拡散の度合いはほとんど依存していない。層の数を変えても応答に違いがないということは、流れ方向への遅延係数の分布の仕方は系の応答に関係ない、すなわち、異なる遅延係数の層境界での物質移動はこの場合系の応答に大きな影響を及ぼさない。層境界での濃度勾配による物質移動の方向が流れと同じ方向なので、移流項による物質移行が支配的になるため、系全体の応答に及ぼす層の数の影響は小さいものになる。したがって応答は、層境界の数に依存せずほとんど同じになり、算術平均値を一樣に分布した場合の応答に近似できる。以上のことにより、系全体の遅延効果に影響を与える重要な要素は流れと垂直な方向への遅延効果の分布であるということが言える。

#### 4.5 遅延係数が確率密度関数に従って分布している場合の応答

つぎに遅延係数がランダムに分布している場合の応答について考える。たとえば花崗岩を構成するような複数の鉱物の配列を想定し、対数正規分布およびベルヌーイ試行列の 2 種類の確率密度関数を用いて遅延係数をランダムに分布させその応答を見る。なお、ここで 2 種類の確率密度関数を用いているが、これは実際に花崗岩の鉱物の配列がこれらの関数



にしたがっているというわけではなく、分布の仕方がわからないものを（実際地層中の鉱物の配列を知ることは困難である）どのように扱えるのかを整理するために用いただけである。すなわち、分布を与える確率密度関数の特定は目的ではなく、それぞれの分布による応答を、遅延係数の算術平均値、標準偏差、歪度といったモーメントを用いて比較することで、系全体の特性を整理することが目的である。そのために対数正規分布のもつ歪度と等しい分布を取りうる関数としてベルヌーイ試行列を選んだ[25]。前節と同様に用いる遅延係数はその算術平均値を用いて無次元化したもので、算術平均値はいずれの場合も1とする。また無次元浸透率は一律に1、ペクレ数は500とし、異方性はないとして計算した。 $\bar{R}_d$ の標準偏差 $\sigma$ 、歪度 $S_K$ は以下のように定義される。

$$\sigma^2 = \int_{\bar{R}_{d\min}}^{\infty} F(\bar{R}_d)(\bar{R}_d - \bar{R}_{d\text{AVE}})^2 d\bar{R}_d \quad (4.1)$$

$$S_K = \frac{\int_{\bar{R}_{d\min}}^{\infty} F(\bar{R}_d)(\bar{R}_d - \bar{R}_{d\text{AVE}})^3 d\bar{R}_d}{\sigma^3} \quad (4.2)$$

ここで $F$ は $\bar{R}_d$ の確率密度関数、 $\bar{R}_{d\min}$ は正規化した場合の最小の遅延係数、そして $\bar{R}_{d\text{AVE}}$ は $\bar{R}_d$ の算術平均値で1である。

確率密度関数による遅延係数の分布は、領域を $10 \times 10$ に分けそれぞれのセルに擬似乱数により設定した。分布された遅延係数の応答は試行回数による平均の応答である。本研究においては試行回数は10回とした[26]。図4.8に示すように、ベルヌーイ試行列において、試行回数が10回の場合と20回の場合で応答

は同じである。したがって、本研究の計算条件において平均の応答は10回の試行で収束する。

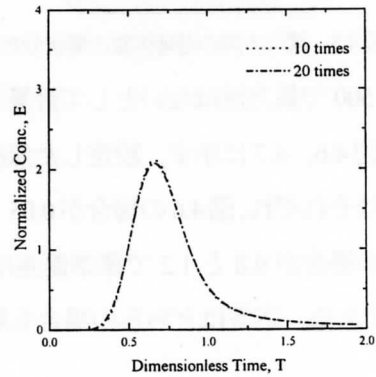


図4.8 試行回数による平均の応答

図4.9、4.10に計算による応答を示す。図4.9が遅延係数の標準偏差が0.3の場合、図4.10が0.9の場合である。図より、確率密度関数の種類によらずその応答は遅延係数の算術平均値を一律に分布させた場合の応答に近づく

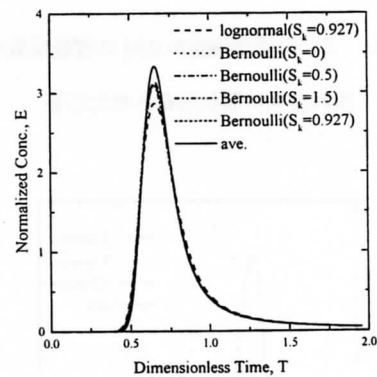


図4.9 遅延係数がランダムに分布し、その標準偏差が0.3の場合の応答

ことがわかる。図4.9のように標準偏差が小さい場合には、それぞれの媒体での遅延効果に差がなく境界での物質移動があまり起こらないので、確率密度関数の種類にも歪度にも



よらず、その応答は算術平均値の応答に近似することができる。また、図 4.10 のように標

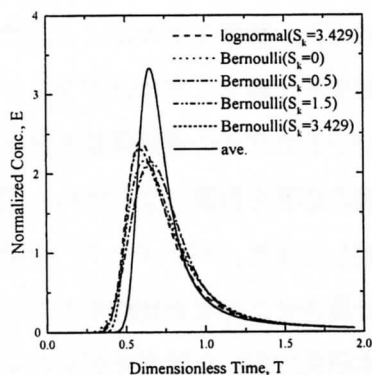


図 4.10 遅延係数がランダムに分布し、

その標準偏差が 0.9 の場合の応答

標準偏差が大きい場合には歪度によってその応答にやや違いは見られるものの、こちらも算術平均の応答とほぼ同じと見ることができる。標準偏差が大きく歪度も大きいということは小さい遅延係数の領域が多数を占めることになる。したがって遅延係数の異なる境界の存在が少なく、その分、拡散も起こりにくくなるため、算術平均の応答よりは、遅延係数の小さい場合の応答よりになる。また歪度が小さい場合は、満遍なく分布するため境界ができ、混合拡散が進み応答が低くなる。したがって、遅延係数がランダムに分布する際の応答は、分布する遅延係数の標準偏差と歪度により整理できることがわかった。標準偏差から、算術平均値を一樣に分布させた場合の応答のピークよりどれぐらいピークの高さがずれるか、歪度から、ピークの位置がどれだけずれるかを判断できる。しかしいずれの場合も、その応答は算術平均値の応答で近似する

ことが可能である。また、従来の報告では対数正規分布に従う場合、系の代表値として幾何平均を用いることが一般になされるが、むしろ算術平均の方が、核種の移行速度をよく表わすことがわかった。

## 4.6 結言

本章では、2 次元数学モデルを用いて遅延係数の様々な空間分布について、その分布が系の遅延効果に与える影響について整理した。異なる遅延係数の分布により生じる媒体の境界における物質移動が系の応答へ影響を与えることがわかった。特に、境界での物質移動のうち、移流方向に垂直な方向への物質移動が大きく効く。また、遅延係数の分布の形状がわからなくとも、分布の影響は遅延係数の標準偏差と歪度で整理できることがわかった。遅延係数が移流と垂直な方向へ分布することにより、境界での物質移動が頻繁に起こり拡散が進むので、境界が多くなるような様々な鉱物が分布しているような地層では、算術平均値を用いた応答に近似することができる。遅延係数の分布に偏りがある場合にも、標準偏差と歪度より算術平均値を用いた応答からどれだけずれているかを判断することができる。また従来、分布が対数正規分布に従う系においてその代表値として幾何平均が一般に用いられるが、算術平均の方がよりよく核種の移行速度を表すことがわかった。

## 5 結論

遅延効果の一樣でない系において、その核

種移行に影響を及ぼす要素は異なる遅延係数を持つ媒体境界での物質移動であることがわかった。特に移流方向に垂直な方向への物質移動が強い影響を及ぼす。また、このことは混合拡散係数に異方性がないと単純化した数学モデルによっても十分表せることがわかった。したがって、異なる遅延効果の分布する系を評価するためには、それぞれの媒体間で物質移動が起こりやすいかどうかを評価すればよい。物質移動は主に境界での濃度勾配によるものであり、濃度勾配は遅延係数が大きく違うものが隣り合えば大きくなる。遅延係数の値にどれだけの幅があり、またその分布にどれだけ偏りがあるかを遅延係数の標準偏差と歪度から判断し、遅延係数の算術平均値を一様に分布させた場合の応答からのずれを知ることで、具体的な鉱物の分布を特定できなくとも、系の応答を評価することができる。

本研究により得られた知見を以下にまとめる。

## 第2章「物理モデルによる実験」

- 1) 遅延効果の異なる層が移流と垂直方向に分布している際、その分布が細かくなると応答は遅延係数の算術平均値を一様に分布させた場合の応答に近づく。これは遅延効果が異なることにより層の境界で濃度勾配ができ、物質移動が生じるため見かけ上混合拡散が進むためである。
- 2) 系全体の遅延効果に及ぼす流量の影響は、核種の収着、脱着の速度に比べて十分遅ければ考慮しなくて良い。

## 第3章「2次元数学モデルの作成とその妥当性」

- 3) 3次精度上流差分法を用いて数学モデルを作成した。数学モデルによる計算値と実験結果を比較して求めたガラスビーズおよびシリカゲルの遅延係数を分布させて多層の応答を計算により求め、実験値と比較し、また、パラメーターを変化させて計算させた結果を比較することにより、本研究で用いた数学モデルの妥当性が示された。
- 4) 本研究において混合拡散係数は等方的であるとして数値計算を行い、その応答は実験結果をよく表わすことができた。

## 第4章「数学モデルによる遅延係数の空間分布の検討」

- 5) 数学モデルにより、移流方向に遅延係数が層状に分布している際の応答を求めたところ、層の数に関係なくその応答は遅延係数の算術平均値を一様に分布させた場合の応答と変わらないことがわかった。このことから系の応答に影響を及ぼすのは、移流と垂直な方向への物質移動であると言える。
- 6) 種々の遅延係数がランダムに分布する場合、系全体の物質移行はその分布の形態によらず遅延係数の算術平均値を用いた応答により近似できる。また、分布に偏りがある場合も、遅延係数の標準偏差と歪度を用いて、遅延係数の算術平均値を一様に分布させた場合の応答からのずれを考慮することができる。

以上のような知見が得られた。

本研究において、上記 4) でも述べたように遅延係数が空間的に分布する系の混合拡散係数を等方的であると単純化した。しかしこれは、本研究で用いたガラスビーズとシリカゲルの間での物質移動による見かけの混合拡散がうまく表されただけという可能性もある。今後層間の物質移動による混合拡散の、見かけの混合拡散係数についての研究を進めることは、安全評価の研究に更なる発展をもたらすであろう。

## 参考文献

- [1] 土井和巳：そこが知りたい放射性廃棄物，日刊工業新聞社（1993）
- [2] 資源エネルギー庁公益事業部編：電源開発の概要 平成 10 年度版（1999）
- [3] JNC：わが国における高レベル放射性廃棄物地層処分の技術的信頼性—地層処分研究開発第 2 次取りまとめ—（1999）
- [4] T. Kubota, O. Tochiyama, K. Tanaka and Y. Niibori：Complex formation of Eu(III) with polyacrylic acid, *Radiochim. Acta*, **88**, 1-4（2000）
- [5] 島崎英彦，新藤静夫，吉田鎮男編：放射性廃棄物と地質学 地層処分の現状と課題，東京大学出版会（1995）
- [6] 福井正美 他編：「天然バリア K<sub>d</sub>」専門研究会報告書，京都大学原子炉実験所（1999）
- [7] Alan L. Noell, Joseph L. Thompson, M. Yavuz Corapcioglu and Ines R. Triay：The role of silica colloids on facilitated cesium transport through glass bead columns and modeling, *J. Contam. Hydrol.*, **31**, 23-56（1998）
- [8] D. Wildenschild and K. H. Jensen：Laboratory investigations of effective flow behavior in unsaturated heterogeneous sands, *Water Resour. Res.*, **35**, 17-27（1999）
- [9] 内田滋夫 他：分配係数の測定法及び利用法，日本原子力研究所（1995）
- [10] 朽山修 他：核種移行モデルにおける収着分配係数の概念とその適用性，原子力バックエンド研究，**5**, 3-19（1998）
- [11] 上野景平：キレート滴定法，南江堂（1972）
- [12] 日本分析化学会北海道支部編：増補新版分析化学実験，化学同人（1978）
- [13] S. B. Savvin：Analytical Use of Arsenazo-III Determination of Thorium, Zirconium, Uranium and Rare Earth Elements, *Talanta*, **8**, 673-685（1961）
- [14] JNC：釜石原位置試験総括報告書（1999）
- [15] Andre P. Legrand：The Surface Properties of Silicas, JOHN WILEY & SONS（1998）
- [16] 地学団体研究会，地学事典編集委員会編：増補改訂地学事典，平凡社（1970）
- [17] 白水晴雄：粘土鉱物学—粘土科学の基礎—，朝倉書店（1988）
- [18] D. Haga：Hydrodynamic dispersion and mass transfer in unsaturated flow, *Water Resour. Res.*, **35**, 1065-1077（1999）

- [19] Roger J. M. De Wiest : FLOW THROUGH POROUS MEDIA, ACADEMIC PRESS (1969)
- [20] O. Levenspiel : CHEMICAL REACTION ENGINEERING, JOHN WILEY&SONS (1972)
- [21] 新堀雄一, 洪承燮, 千田侑 : 熱移動を伴う垂直二次元多孔質体におけるトレーサー応答—その室内実験と数値モデルとの比較—, 地下水学会誌, **36**, 123-132 (1994)
- [22] Yuichi Niibori, Osamu Tochiyama, Tadashi Chida : DEPENDENCE OF MASS TRANSPORT ON SPATIAL VARIABILITY OF THE RETARDATION EFFECT , Migration '99 , No.PC3-03 (1999)
- [23] Akira KITAMURA et al. : Analysis of Adsorption Behavior of Cations onto Quartz Surface by Electrical Double-layer Model, J. Nucl. Sci. Technol., **36**, 1167-1175 (1999)
- [24] 中川啓 他:不均一多孔媒体中の流れと物質輸送特性について, 地下水学会誌, **40**, 1-16 (1998)
- [25] Y. NIIBORI , O. TOCHIYAMA , T. CHIDA : UNDERSTANDING OF RELATIONSHIP BETWEEN THE AVERAGE MASS TRANSPORT RATE AND THE MOMENTS OF PERMEABILITY, Mat. Res. Soc. Symp. Proc., **556**, 751-758 (1999)
- [26] Y. NIIBORI , O. TOCHIYAMA , T. CHIDA : ESTIMATION OF THE RADIONUCLIDE TRANSPORT BY APPLYING THE MEAN , THE STANDARD DEVIATION AND THE SKEWNESS OF PERMEABILITY, Mat. Res. Soc. Symp. Proc., **465**, 917-924 (1997)

本報告書収録の学術雑誌等発表論文は本ファイルに登録しておりません。なお、このうち東北大学在籍の研究者の論文で、かつ、出版社等から著作権の許諾が得られた論文は、個別に **TOUR** に登録しております。